



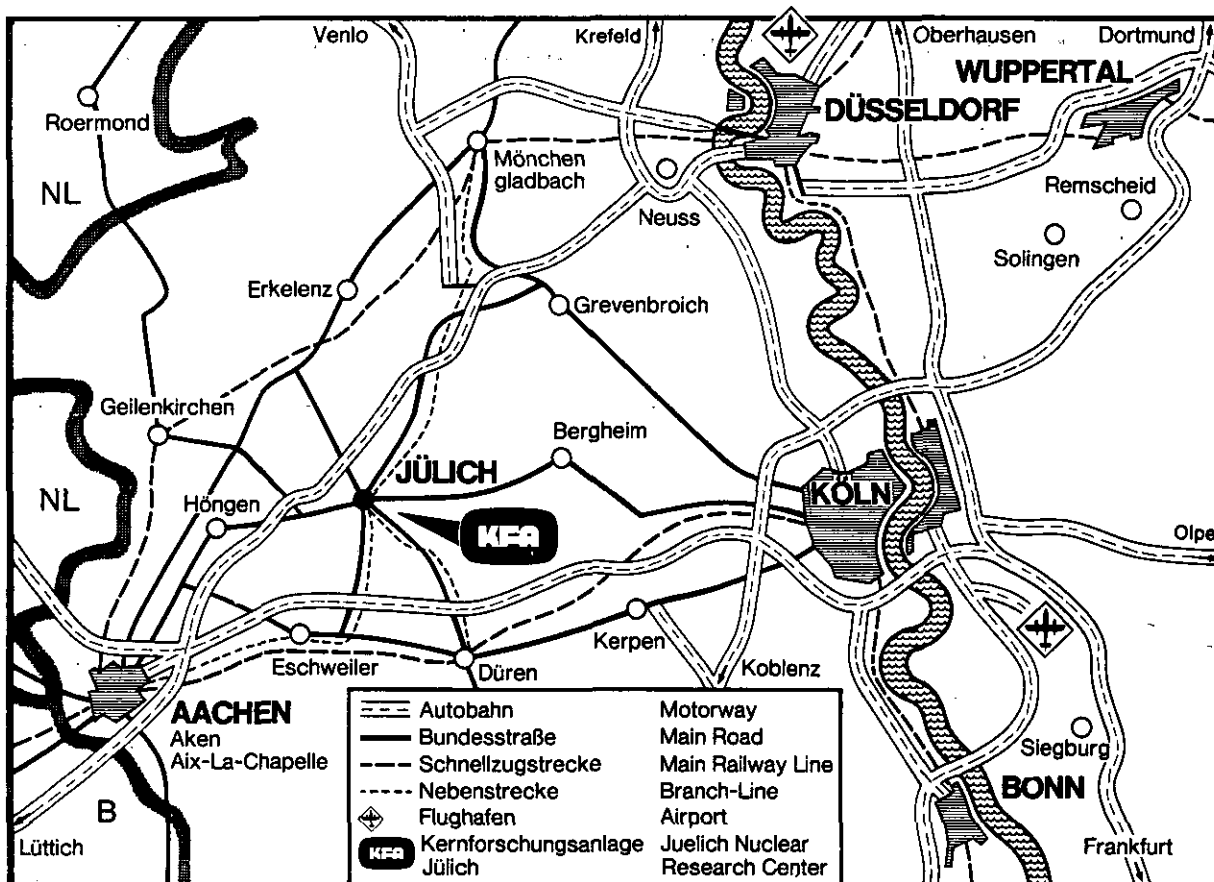
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

**Vorträge über beschichtete Brennstoff-
teilchen, Brennelemente und graphitische
Werkstoffe für fortgeschrittene
Hochtemperaturreaktoren
auf der Jahrestagung Kerntechnik 1980**

**Jahrestagung Kerntechnik, Reaktortagung 1980
Kerntechnische Gesellschaft e. V.
Deutsches Atomforum e. V.
Berlin, 25.- 27. März 1980**

zusammengestellt von
J. Rottmann

**Jül - Conf - 38
August 1980
ISSN 0344-5798**



Als Manuskript gedruckt

Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Jül - Conf - 38

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH
Postfach 1913 · D-5170 Jülich 1 (Bundesrepublik Deutschland)
Telefon: (02461) 61-0 · Telex: 833556 kfa d

**Vorträge über beschichtete Brennstoff-
teilchen, Brennelemente und graphitische
Werkstoffe für fortgeschrittene
Hochtemperaturreaktoren
auf der Jahrestagung Kerntechnik 1980**

**Jahrestagung Kerntechnik, Reaktortagung 1980
Kerntechnische Gesellschaft e. V.
Deutsches Atomforum e. V.
Berlin, 25.- 27. März 1980**

zusammengestellt von

J. Rottmann

Papers concerning fuel particles, fuel elements and graphitic materials for high temperature reactors presented at the 1980 annual conference "Kerntechnik"

compiled by
J. R o t t m a n n

SUMMARY

This report is a compilation of the papers presented by staff of the Institute for Reactor Materials, KFA-Jülich, at the 1980 annual conference "Reaktor-technik", held in Berlin, 25-27th March 1980. In some cases, there were co-authors from other organisations. Where possible the manuscripts of the presentations have been reproduced, as well as the display cards shown during the poster session on the conference.

In the presentations, the questions of the characterization of fuel particles and the retention of fission products are dealt with, and special attention is given to fission product release at very high temperatures. One presentation deals with the disposal of fuel elements from the AVR.

Another report presents the results of radiation experiments on the standard matrix material A3-3 of the THTR fuel elements; the changes in dimensions, creep coefficient and thermal conductivity were measured as functions of the fluence and the radiation temperature.

Interim results obtained from long-term radiation experiments on reflector graphites for high and very high flux reactors are presented, and models for the calculation of dimensional changes in components subjected to fluctuating temperatures from data obtained in isothermal tests are discussed.

The investigations reported were partly carried out for the Project "High Temperature Reactor Fuel Cycle" involving as partners the Gesellschaft für Hochtemperaturreakorteknik mbH, Hochtemperaturreaktor-Brennelement GmbH, Hochtemperaturreaktorbau GmbH, Kernforschungsanlage Jülich GmbH, NUKEM GmbH, and SIGRI Elektrographit GmbH/Ringsdorff-Werke GmbH. The Project is financially the BMFT and the State of North Rhine-Westphalia.

Vorträge über beschichtete Brennstoffteilchen,
Brennelemente und graphitische Werkstoffe für
fortgeschrittene Hochtemperaturreaktoren auf
der Jahrestagung Kerntechnik 1980

zusammengestellt von:

J. R o t t m a n n

KURZFASSUNG

Dieser Bericht enthält die Zusammenstellung der Beiträge, die von Mitarbeitern des Instituts für Reaktorwerkstoffe der KFA-Jülich zum Teil unter Beteiligung von Angehörigen anderer Institutionen auf der Jahrestagung Kerntechnik 1980 in Berlin vom 25. bis 27. März 1980 vorgetragen wurden. Es handelt sich hierbei soweit verfügbar um die Vortragsmanuskripte sowie die auf der Poster-Session vorgestellten Plakate.

In den Beiträgen werden Fragen der Charakterisierung von Brennstoffpartikeln und der Spaltproduktrückhaltung behandelt, wobei besonderes Augenmerk auf die Spaltproduktfreisetzung bei extremen Temperaturen gelegt wird. Ein Beitrag befaßt sich mit der Fragestellung der Entsorgung von Brennelementen aus dem AVR.

Ein weiterer Beitrag stellt Ergebnisse der Bestrahlungserprobung der Standardmatrix A3-3 für das THTR-Brennelement vor, wo die Änderung der Lineardimensionen, Kriechkoeffizienten und Wärmeleitfähigkeit bei Bestrahlung als Funktion der Fluenz bzw. Bestrahlungstemperatur gemessen wurden.

Zwischenergebnisse der Langzeitbestrahlungen von Reflektorgraphit in Hoch- und Höchstflußreaktoren werden in einem anderen Vortrag behandelt. Es werden u.a. Modelle für die Ermittlung der Dimensionsänderung bei wechselnden Temperaturen aus isothermen Bestrahlungsdaten diskutiert.

Die Arbeiten wurden teilweise im Rahmen des Projektes "HTR-Brennstoffkreislauf" durchgeführt, an denen die Partner Gesellschaft für Hochtemperatur-Technik mbH, Hochtemperaturreaktor-Brennelement GmbH, Hochtemperatur-Reaktorbau GmbH, Kernforschungsanlage Jülich GmbH, NUKEM GmbH und SIGRI Elektrographit GmbH/Ringsdorf-Werke GmbH beteiligt sind und das vom BMFT und dem Land Nordrhein-Westfalen gefördert wird.

Autoren des Berichtes/List of Contributors:

| | |
|-------------------------------|-----------------------------|
| L. Binkele ¹⁾ | A.-W. Mehner ⁷⁾ |
| U. Brinkmann ²⁾ | M.F. O'Connor ⁸⁾ |
| R. Büscher ³⁾ | K. Petersen ³⁾ |
| W. Delle ¹⁾ | R.J. Price ⁹⁾ |
| R. Duwe ¹⁾ | G. Reitsamer ⁵⁾ |
| R. Engelstätter ⁴⁾ | W. Rind ⁷⁾ |
| G. Falta ⁵⁾ | W. Schenk ¹⁾ |
| R. Förthmann ¹⁾ | H.A. Schulze ¹⁾ |
| E. Gyarmati ¹⁾ | R.-E. Schulze ¹⁾ |
| G. Haag ¹⁾ | G. Stolba ⁵⁾ |
| C.R. Kennedy ⁶⁾ | S. Storch ⁴⁾ |
| G. Kleist ¹⁾ | M. Wimmers ¹⁰⁾ |
| P. Krautwasser ¹⁾ | |

- 1) Kernforschungsanlage Jülich GmbH, IRW
- 2) Kernforschungsanlage Jülich GmbH, HBK
- 3) Kernforschungsanlage Jülich GmbH, IRE
- 4) Kernforschungsanlage Jülich GmbH, AP
- 5) Forschungszentrum Seibersdorf, ÖSGAE, Österreich
- 6) Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge/Tenn., USA
- 7) HOBEG mbH, Hanau
- 8) SIGRI Elektrographit GmbH, Meitingen
- 9) General Atomic Company, San Diego/Cal., USA
- 10) Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor GmbH, Jülich

| | | |
|----|---|----|
| 1. | Chlorgaslaugung unbestrahlter und bestrahlter HTR-Brennelemente G. Stolba, G. Reitsamer, G. Falta, W. Schenk | 1 |
| 2. | Vergleich der Materialeigenschaften mit der Spaltprodukt- rückhaltung von SiC-Hüllschichten P. Krautwasser, R. Förthmann, E. Gyarmati, A.-W. Mehner | 9 |
| 3. | Die Brennelement-Spaltproduktbarrieren des Kugelhaufen- Hochtemperaturreaktors im hypothetischen Störfall K. Petersen, W. Schenk, R. Büscher | 15 |
| 4. | Entsorgung des AVR-Versuchskernkraftwerks und Unter- suchungen in abgebrannten Brennelementen für trockene Zwischenlagerung U. Brinkmann, R. Duwe, R. Engelstätter, S. Storch, W. Wimmers Teil 1 Planung und Stand der Entsorgung des AVR-Versuchskern- kraftwerks Teil 2 Experimentelle Untersuchungen an abgebrannten HTR- Brennelementen | 19 |
| 5. | Bestrahlungserprobung der graphitischen Matrix für kugelförmige HTR-Brennelemente W. Delle, L. Binkele, G. Kleist, W. Rind, H.A. Schulze, R.-E. Schulze | 33 |
| 6. | Fortschritte bei der Bestrahlungserprobung von Graphit für Hochtemperaturreaktoren G. Haag, M.F. O'Connor, C.R. Kennedy, R.J. Price | 43 |

CHLORGASLAUGUNG UNBESTRAHLTER UND BESTRAHLTER HTR-BRENNELEMENTE *

G. Stolba, G. Reitsamer, G. Falta

Forschungszentrum Seibersdorf, Österr. Studiengesellschaft für
Atomenergie Ges.m.b.H., A-2444 Seibersdorf

W. Schenk

Kernforschungsanlage Jülich GmbH, Postfach 1913, D-5170 Jülich 1

Ein wesentliches Kriterium für das Bestrahlungsverhalten von HTR-Brennelementen stellt die Menge an freiem Schwermetall dar. Als "freies" Schwermetall bezeichnen wir den Anteil des Brennstoffs, der nicht von einer intakten Beschichtung - also einem dichten Coating - umgeben ist und daher einen wesentlichen Beitrag zur Spaltproduktfreisetzung während der Bestrahlung leistet.

In einem unbestrahlten Brennelement liegt das freie Schwermetall einerseits in Form von Matrixkontamination vor. Zusätzlich kann ein Beitrag von den Brennstoffkernen selbst kommen, wenn ein herstellungsbedingter Beschichtungsdefekt vorliegt. Während der Bestrahlung kann sich dieser Anteil durch strahlungsinduzierten Bruch des Coatings erhöhen.

Bisher war die Quantifizierung dieses freien Schwermetalls nur durch Desintegration der Brennelemente möglich. Zur Erfassung standen zwei Methoden zur Verfügung: Einerseits naßchemische Laugungsverfahren, andererseits ein Gasextraktionsverfahren basierend auf der Bildung flüchtiger Schwermetallchloride. Vor allem die letztgenannte Methode wurde im Forschungszentrum Seibersdorf seit Jahren eingehend untersucht und mit Erfolg eingesetzt. Ausgehend von den dabei gewonnen Erfahrungen wurde nun versucht, diese Gaslaugungsmethode direkt am unzerlegten Brennelement anzuwenden. Nach Verifizierung einer ausreichenden Gasdurchlässigkeit der Brennelementmatrix, welche die Grundvoraussetzung für

* Die Finanzierung der Untersuchungen erfolgte zum Teil durch das Projekt "HTR-Brennstoffkreislauf", an dem die Partner GAG, GHT, HRB, KFA, NUKEM, SIGRI/RW beteiligt sind und das vom Land Nordrhein-Westfalen und vom BMFT gefördert wird.

die Anwendbarkeit dieses Verfahrens darstellt, wurde eine umfangreiche Versuchsserie mit unbestrahlten Testelementen begonnen. Die quasi isostatisch verpreßte graphitische Matrix der Brennelemente wies eine durchschnittliche Dichte von $1,7 \text{ g/cm}^3$ auf.

Diese kugelförmigen bzw. auch zylindrischen Testelemente wiesen durch Einbetten von unbeschichteten Teilchen, bzw. von Teilchen mit künstlich herbeigeführten Beschichtungsdefekten einen definierten freien Schwermetallgehalt auf. Ein Beispiel dafür zeigt Abb. 1 anhand von röntgenografischen Aufnahmen eines kugelförmigen Brennelementes. In diesem Testelement wurden 101 Stück unbeschichtete Thoriumoxidkerne in konzentrischen Kreisen in der Äquatorebene eingebettet. Der Auflösungsvorgang als Funktion der Chlorierungszeit ist aus den nachfolgenden Bildern ersichtlich. Die linke Abbildung zeigt den Zustand nach 15 h, die mittlere nach einer Gaslaugungszeit von 24 h. Hier ist interessant zu beobachten, daß der Auflösungsprozeß überraschenderweise innen rascher fortschreitet als außen. In der nächsten Abbildung, die die Situation nach 50 h zeigt, ist kein Kern mehr erkennbar. Die Bestätigung der quantitativen Extraktion des Thoriums aus dem Brennelement erfolgte anschließend nach chemischen Methoden durch quantitative Analyse der absublimierten Schwermetallchloride. (In diesem Zusammenhang sei noch erwähnt, daß der Dampfdruck von Thoriumchlorid wesentlich niedriger liegt als der der Uranchloride).

Die für die Chlorierung entwickelte Apparatur ist aus der chematischen Darstellung in Abb. 3 zu entnehmen.

Das Brennelement befindet sich auf dem sog. Brennelementaufnehmer. Die erforderlichen Reaktionstemperaturen werden mit Hilfe eines widerstandsbeheizten Ofens erreicht. Die Gaszuführung erfolgt getrennt für Ofenraum und Brennelementaufnehmer. Nach Passieren der Adsorptionssäule werden die Gase über Gaswaschflaschen geleitet, in denen mit Hilfe von Kalilauge das Chlorgas gebunden wird.

Bei der Anwendung dieser Methode auf bestrahlte Brennelemente wurde ein schonendes Aufheizprogramm ausgewählt, um temperaturinduzierte Beschichtungsdefekte mit Sicherheit ausschließen zu können (Tab. 1). In der Aufheizphase wird das System mit getrocknetem Argon gespült, um Feuchtigkeit und Sauerstoff aus der Apparatur und dem Brennelement zu entfernen.

Aus der Tab. 2 sind die Ergebnisse aus der Chlorierung abgebrannter AVR-Brennelemente mit Mischoxidpartikeln ersichtlich. Bei Brennelement Nr. 5 wurde das Schwermetalläquivalent von zwei und bei Brennelement Nr. 6 das von sieben gebrochenen Partikeln ermittelt. Im Falle des Brennelementes Nr. 7, bei dem das gefundene freie Uran dem Inventar eines kleineren Teilchens entspricht, konnte nach einer massenspektrometrischen Bestimmung der Isotopenzusammensetzung eindeutig das Uran als Brennstoffuran identifiziert werden. Somit war eine überhöhte Natururankontamination der Matrix als Quelle des freien Urans auszuschließen. An zwei weiteren Brennelementen wurden durch ein Nachbestrahlungsausheizprogramm gezielt Partikeldefekte initiiert. Dabei wurde die freigesetzte Menge an Kr 85 gemessen und daraus eine Abschätzung der Schadensquote durchgeführt. Wie man aus der Tab. 3 entnehmen kann, besteht eine gute Übereinstimmung dieser Resultate mit den aus der nachfolgend durchgeführten Chlorgaslaugung ermittelten Werten.

Man sieht, daß die Kryptonwerte etwas niedriger liegen als die Uranwerte. Dies ist daraus zurückzuführen, daß bei einem Berst nicht das ganze Kryptoninventar eines Teilchens freigesetzt wird, sondern eine Abhängigkeit von der Temperatur und vom Abbrand der Teilchen besteht.

Die quantitative Abchlorierung der Brennstoffkerne aus den Teilchen mit defekter Beschichtung konnte zusätzlich noch durch nachfolgende keramographische Untersuchungen bei der KFA-Jülich an einer der chlorierten Kugeln sozusagen auf optischem Weg bestätigt werden.

In einer Schliffebene wurden 254 Partikeln erfaßt. Davon waren 251 intakte Teilchen mit komplettem Kern und 3 Teilchen mit Beschichtungsdefekten, bei denen der Brennstoffkern infolge der Chlorierung fehlte. In Abb. 4 sei dies anhand zweier ausgewählter Beispiele erläutert. Das linke Teilchen mit komplettem Kern zeigt keinerlei Hinweis auf Beschichtungsdefekte, beim rechten Teilchen hingegen sind deutlich durchgehende Risse des Coatings ersichtlich.

Schlußfolgerungen

Mit diesen Untersuchungen konnte eindeutig nachgewiesen werden, daß Chlorgas die graphitische HTR-Brennelementmatrix durchdringt und dadurch "freies" Schwermetall aus dem Brennelement quantitativ entfernt werden kann.

Sowohl geringste Mengen an freiem Schwermetall als auch hohe Partikel-Schadensquoten können mit diesem Verfahren erfaßt werden. Dies entspricht der bestmöglichen Statistik bei der Untersuchung von einzelnen HTR-Brennelementen.

Daraus ergaben sich folgende wichtige Anwendungsmöglichkeiten:

An unbestrahlten Brennelementen - das Entfernen von Elementen und Verbindungen, welche mit Chlor bei 950°C flüchtige Verbindungen bilden. Das können produktionsbedingte Verunreinigungen der Matrix, wie Uran, Thorium, Eisen, Nickel sowie Spalt- und Brutstoffe aus defekten Partikeln sein.

An bestrahlten Brennelementen - die Erfassung und Bestimmung der im Brennelement nach Bestrahlungsende insgesamt vorliegenden Menge an "freiem" Schwermetall aus Matrixkontamination bzw. auch aus Teilchen mit permeabler oder gebrochener Beschichtung.

Im Vergleich zu den desintegrativen Methoden zur Schadensquotenbestimmung zeichnet sich die Chorgaslaugung durch ihre außerordentlich geringe Belastung der Brennstoffteilchen bei der Nachuntersuchung aus. Bei den meisten Brennelementen liegt die Bestrahlungstemperatur über der Chlorierungstemperatur, so daß untersuchungsbedingte Schadensdefekte ausgeschlossen werden können.

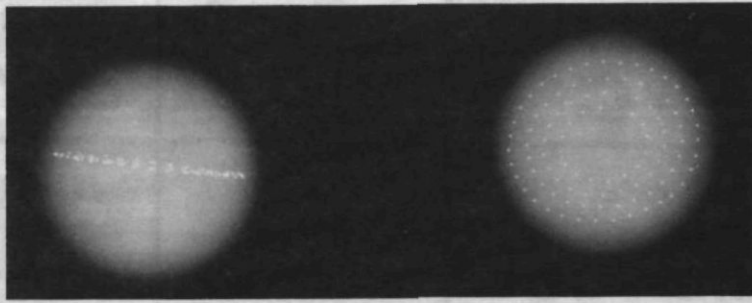


Abb. 1: Röntgenographische Aufnahme eines Testbrennelementes mit unbeschichteten Teilchen vor der Chlorierung

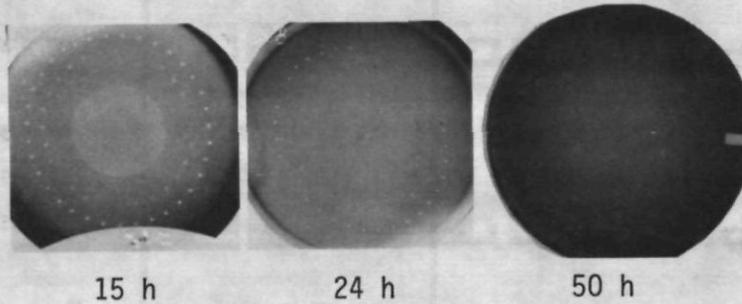


Abb. 2: Röntgenographische Aufnahme eines Testbrennelementes mit unbeschichteten Teilchen nach der Chlorierung

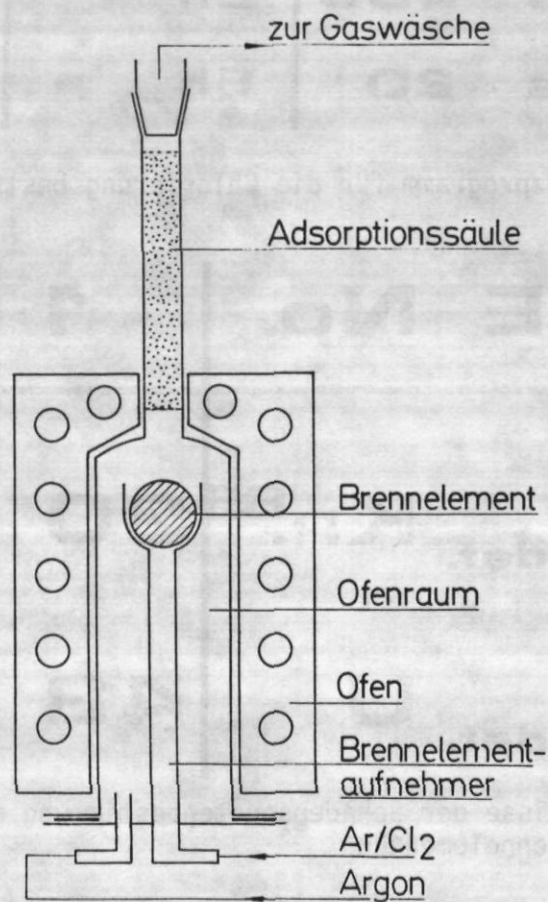


Abb. 3: Chlorierungsapparatur

| TEMP. °C | ZEIT | GAS O.R/B.A |
|---------------------------|---------------|------------------------------|
| 20 | 1 h | Ar/Ar |
| bis 300 | 20 min | -- |
| 300 | 8 h | -- |
| bis 500 | 20 min | -- |
| 500 | 8 h | -- |
| bis 900 | 2 h | -- |
| 900 | 50 h | Ar/Cl |
| bis 400 | 2 h | -- |
| bis 20 | 6 h | Ar/Ar |

Tab. 1: Aufheizprogramm für die Chlorierung bestrahlter Brennelemente

| BE No. | 1 | 2 |
|--|-----------|-----------|
| N_{def.} KR.⁸⁵ | 30 | 76 |
| N_{def.} U | 43 | 88 |

Tab. 2: Ergebnisse der Schadensquotenbestimmung an bestrahlten AVR-Brennelementen

| BE No. | 5 | 6 | 7 |
|-------------------------------|--------------|------------|------------|
| $\mu\text{g U}_{\text{frei}}$ | 30 | 153 | 15 |
| N_{defekt} | 1bis2 | 7 | (1) |

Tab. 3: Vergleich der Schadensquotenbestimmung mit Hilfe der Chlorgaslaugung und der Messung der Kr 85-Freisetzung

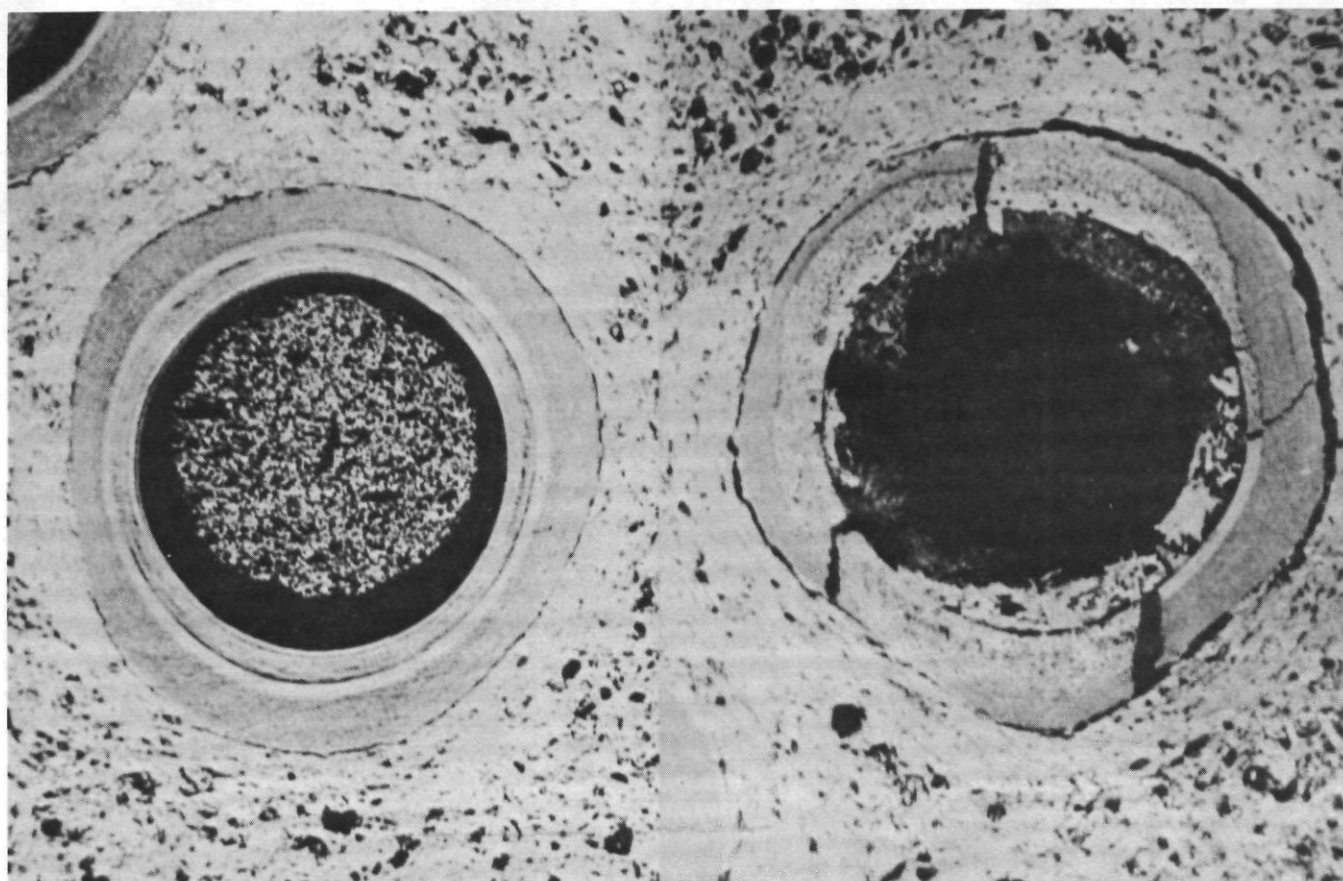


Abb. 4: Schliffbild zwei Partikel nach der Chlorierung.
Links intaktes Partikel mit Brennstoffkern, rechts Partikel mit gebrochener Beschichtung und durch Chlorierung entfernten Brennstoffkern.

VERGLEICH DER MATERIALEIGENSCHAFTEN MIT DER SPALTPRODUKTRÜCKHALTUNG VON SiC – HÜLLSCHICHTEN

P. Krautwasser, R. Förthmann, E. Gyarmati
Institut für Reaktorwerkstoffe
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

A.-W. Mehner
HOBEG mbH
Hanau

1. Gegenstand der Untersuchung

Siliziumkarbid (SiC)-Hüllschichten als Spaltproduktbarriere in Brennstoffteilchen für Hochtemperaturreaktoren (Bild 1).

2. Zielsetzung

Die bisher zur Qualitätskontrolle von SiC angewandten Methoden Keramografie und Dichtemessung sind nicht ausreichend. Weitere Untersuchungsmethoden werden erprobt und die Ergebnisse mit den Herstellungsparametern und der Spaltproduktrückhaltung des SiC verglichen.

Ziel der Arbeiten ist die

- Optimierung der Spaltproduktrückhaltung
- Anwendung der Methoden zur Qualitätskontrolle des SiC.

3. Annahmen zur Diffusion fester Spaltprodukte durch SiC:

- Diffusion erfolgt über Korngrenzen
- Verstärkte Störungen des Mikrogefüges an den Korngrenzen durch
 - Ausscheidung von Silizium
 - Aufweitung der Korngrenzen und Bildung von Diffusions-„Kanälen“
 - Mikroporen
 führen zu einer Beschleunigung der Diffusion.

Diese gestörten Zonen zwischen den SiC-Körnern werden im Folgenden „inhomogene Bereiche“ genannt.

4. Untersuchungsmethoden

- Keramografie
Qualitative Beurteilung des SiC durch visuelle Untersuchung von keramografischen Schliffen.
- Raster-Elektronenmikroskopie (REM)
Qualitative Beurteilung des SiC durch REM-Untersuchungen der Hüllschicht-Oberflächen.
- Röntgen-Kleinwinkelstreuung (SAXS)
 - „Inhomogene Bereiche“ führen zu einer inhomogenen Elektronendichteverteilung im SiC und damit zu einer Röntgen-Kleinwinkelstreuung.
 - Zur quantitativen Bestimmung der Inhomogenität verschiedener Proben wird die Streuintensität einer Probe bei einem Streuwinkel von 1,2 mrad auf den entsprechenden Wert der Probe mit der geringsten Inhomogenität (Referenzprobe) normiert und als „SiC-Inhomogenitäts-Faktor“ ($SIF_{1,2\text{ mrad}}$) bezeichnet.
 - Je höher der SIF ist, desto inhomogener ist die Probe.
 - Bereiche in der Größe zwischen ca. 5 und 80 nm (50 bis 800 Å) entsprechen Streuwinkeln von 5,0 bis 0,3 mrad (17° bis 1°).
- Bestimmung von Spaltprodukt-Diffusionskoeffizienten nach der Durchbruchmethode
 - Glühung (kalt)bestrahlter Partikel bei 1400° C in strömendem Argon.
 - Quantitative Bestimmung der freigesetzten Spaltprodukte durch Kondensation der Spaltprodukte am Kühlfinger, chemische Abtrennung und gamma-spektrometrische Messung der Spaltprodukte.
 - Bestimmung der Diffusionskoeffizienten aus Durchbruchzeit und Verlauf der Freisetzung.

5. Abhängigkeit des SiC-Gefüges von der Abscheidungs geschwindigkeit V_D (Bild 2)

- V_D wird im wesentlichen bestimmt durch
 - Methyltrichlorsilan (CH_3SiCl_3)-Konzentration und -Fluß
 - gesamte Partikeloberfläche
 - Ausbeute (abhängig z.B. von Temperatur, Fließbettdesign).
- Ergebnis: Bei einer SiC-Abscheidungstemperatur T_D von
 - $T_D = 1300^\circ\text{C}$ (Low Temperature LT-SiC) nimmt der SIF und damit die Inhomogenität des SiC mit steigendem V_D ab.
 - $T_D \geq 1400^\circ\text{C}$ (High Temperature HT-SiC) nimmt der SIF mit V_D zu.
 - $T_D = 1500^\circ\text{C}$ ist die Abhängigkeit des SIF von V_D am geringsten.

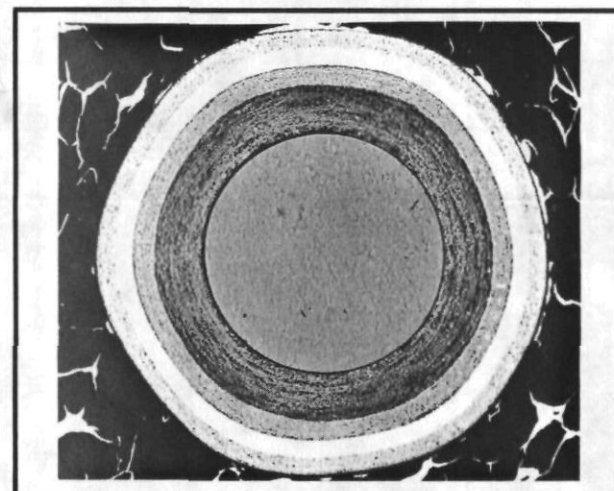


Bild 1: Schliffbild eines Brennstoffteilchens mit SiC-Zwischenschicht.

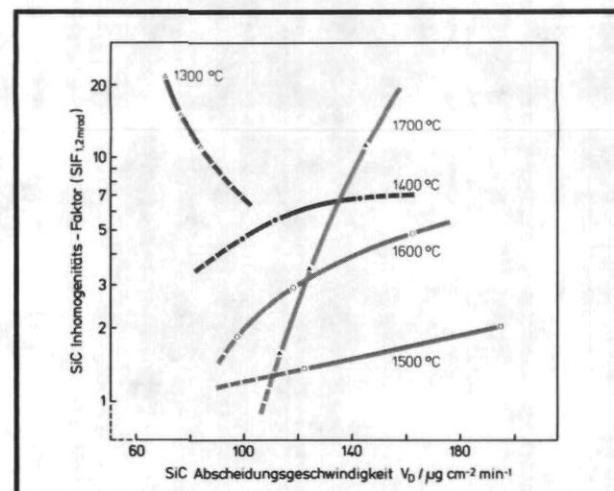


Bild 2: Bei Abscheidungstemperaturen $T_D \geq 1400^\circ\text{C}$ nimmt die Inhomogenität des SiC mit steigendem V_D zu.

6. Abhängigkeit des SiC-Gefüges von der Abscheidungstemperatur T_D (Bild 3)

- Als Abscheidungstemperatur wird die jeweils für ein Fließbett-design geltende Referenztemperatur bezeichnet.
- Ergebnis:
 - $T_D = 1300^\circ\text{C}$
 - Keramografie: „laminares“ Gefüge
 - REM-Untersuchungen: „blumenkohlartige“ Struktur
 - Ursache: alternierende Abscheidung von SiC und freiem Silizium bei niedrigen Abscheidungstemperaturen
 - $T_D = 1500^\circ\text{C}$
 - Keramografie: isotropes, feinkristallines Gefüge
 - REM-Untersuchungen: stark verwachsene SiC-Körner, „dichtes“ Gefüge
 - $T_D > 1500^\circ\text{C}$
 - Keramografie: Kornvergrößerung, Zunahme der Porosität
 - REM-Untersuchungen: Zunehmende Breite der Korngrenzen, Bildung von „Kanälen“ oder schwammartigem Gefüge
- Bei einer Abscheidungs-geschwindigkeit $V_D \geq 120 \mu\text{g}/\text{min}\cdot\text{cm}^2$ weist der SIF bei $T_D = 1500^\circ\text{C}$ ein Minimum auf.

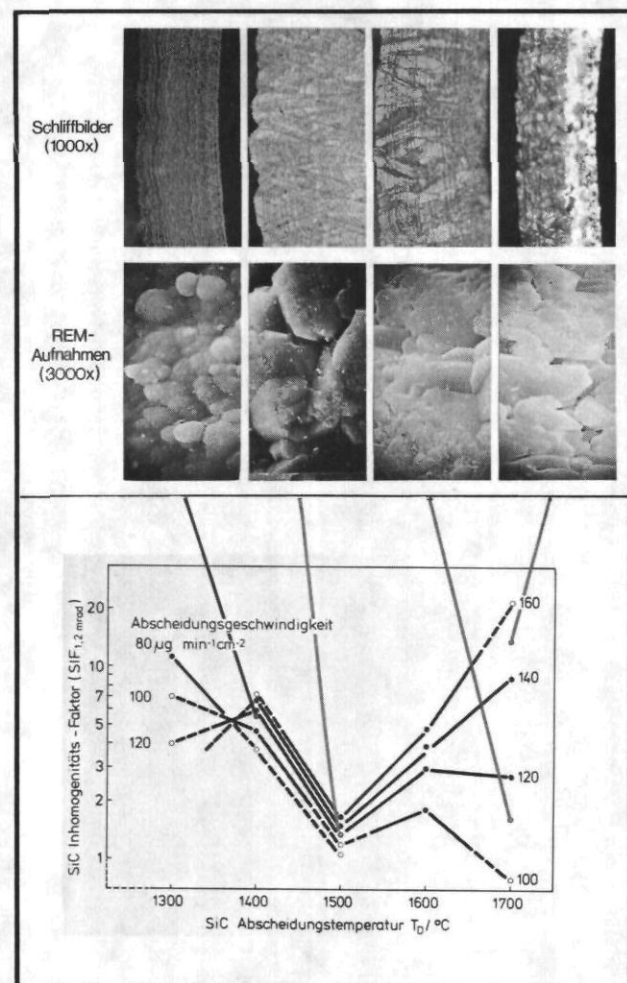


Bild 3: Nach REM-Untersuchungen, Keramografie und SIF weisen SiC-Schichten mit $T_D = 1500^\circ\text{C}$ die geringste Inhomogenität auf.

7. Einfluß der Abscheidungstemperatur T_D auf die Größe der „inhomogenen Bereiche“ (Bild 4)

- Ergebnis: Das Maximum der Größenverteilung der inhomogenen Bereiche im SiC liegt bei einer Abscheidungstemperatur von
 - $T_D = 1300^\circ\text{C}$ unter 5 nm (50 Å)
Ursache: Dünner „Film“ aus freiem Silizium an den Korngrenzen
 - $T_D = 1700^\circ\text{C}$ über 20 nm (200 Å)
Ursache: Aufweitung der Korngrenzen.

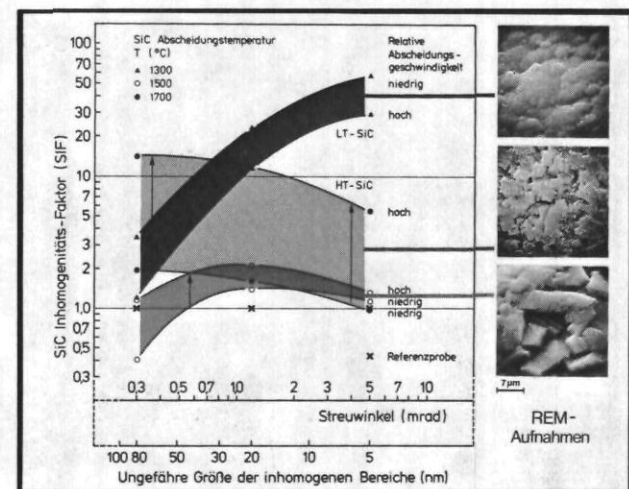


Bild 4: Die inhomogenen Bereiche in LT- und HT-SiC sind unterschiedlich groß.

8. Änderung des SiC-Gefüges bei Bestrahlung (Bild 5)

- Die Inhomogenität von SiC-Hüllschichten mit hoher Anfangsinhomogenität nimmt bei hohen Fluenzen schneller Neutronen zu.

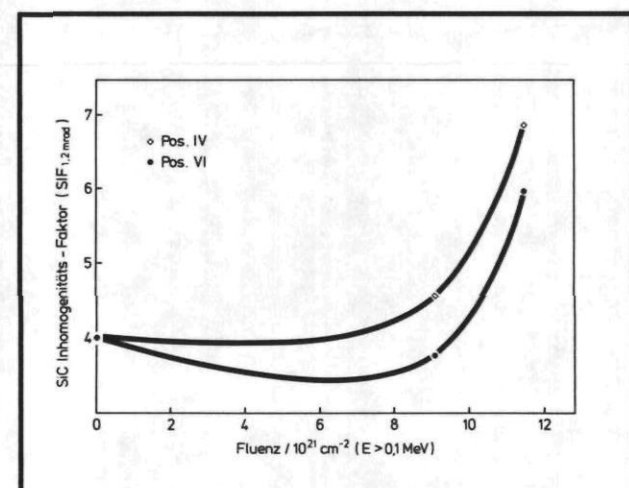


Bild 5: Die Inhomogenität von SiC-Hüllschichten mit hoher Anfangsinhomogenität nimmt bei hohen Fluenzen schneller Neutronen zu.

9. Erste Ergebnisse von Messungen der Spaltproduktfreisetzung

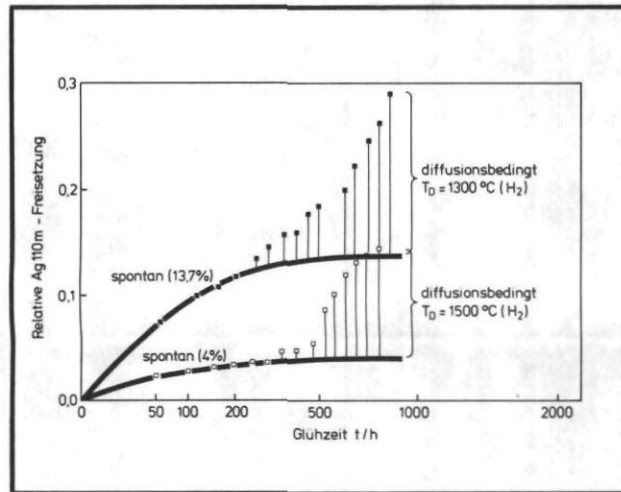


Bild 6: Silberfreisetzung aus kaltbestrahlten TRISO-Partikeln bei 1400°C.

Zwei Freisetzungsmechanismen:

- verzögerungsfrei mit einer der Kernfreisetzung entsprechenden Kinetik („spontane“ Freisetzung),
- diffusionsbedingte Freisetzung nach „Durchbruchzeiten“ zwischen 250 und 400 Stunden.

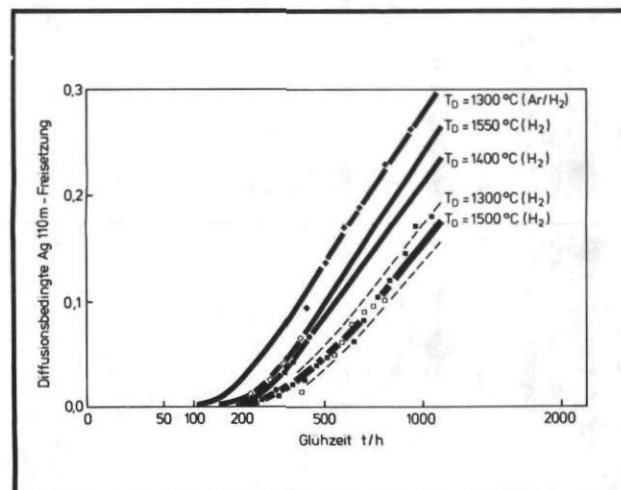


Bild 7: Diffusionsbedingte Silberfreisetzung bei 1400°C.

Die Meßwerte wurden durch Diffusionsrechnung angepaßt (durchgezogene Kurven).

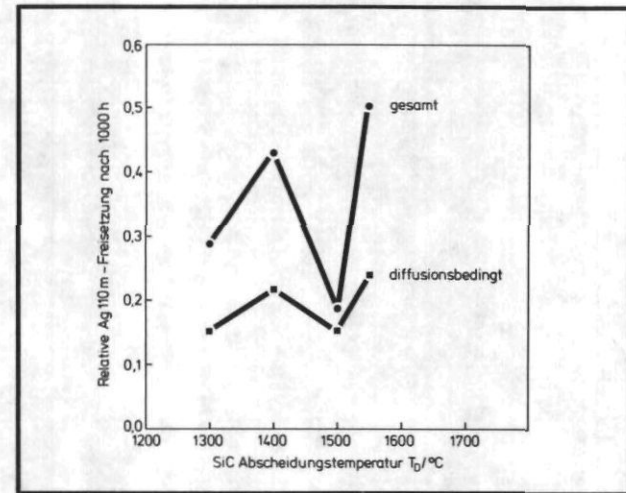


Bild 8: Relative Freisetzung von Ag 110m nach jeweils 1000 Stunden Glühzeit bei 1400°C.

Gesamtfreisetzung und diffusionsbedingte Freisetzung haben die gleiche Abhängigkeit von der SiC-Abscheidungstemperatur mit einem ausgeprägten Minimum bei $T_D = 1500^\circ\text{C}$.

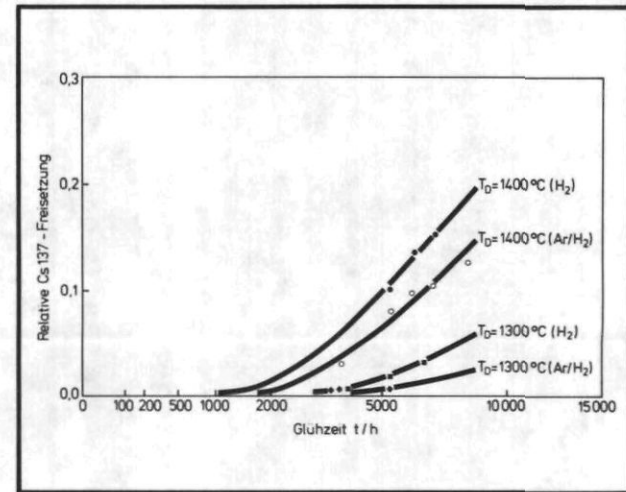


Bild 9: Cs 137-Freisetzung aus unbestrahlten TRISO-Partikeln bei 1400°C.

Der Diffusionskoeffizient des Cs 137 ist in LT-SiC (Abscheidungstemperatur 1300°C) kleiner als in SiC, das bei 1400°C abgeschieden wurde.

Die Verwendung von Ar/H₂ als Trägergas (50% H₂) anstelle von reinem H₂ bewirkt in diesem Falle nur eine geringfügige Verringerung des Cs-Diffusionskoeffizienten in SiC.

| SiC-Abscheidung $T_D/^\circ\text{C}$ | Trägergas | Diffusionskoeffizient in SiC $D_s/\text{cm}^2\text{s}^{-1}$ | |
|---|-------------------|--|----------------------|
| | | Cs 137 | Ag 110m |
| 1300 | H ₂ | $9,2 \cdot 10^{-14}$ | $1,5 \cdot 10^{-12}$ |
| | Ar/H ₂ | $< 5 \cdot 10^{-14}$ | $2,1 \cdot 10^{-12}$ |
| 1400 | H ₂ | $1,8 \cdot 10^{-13}$ | $1,7 \cdot 10^{-12}$ |
| | Ar/H ₂ | $1,6 \cdot 10^{-13}$ | - *) |
| 1500 | H ₂ | - *) | $1,5 \cdot 10^{-12}$ |
| 1550 | H ₂ | - *) | $2,5 \cdot 10^{-12}$ |

*) noch nicht gemessen

Tabelle: Diffusionskoeffizienten fester Spaltprodukte in unbestrahltem SiC:

Aus der Durchbruchzeit $t_0 = \frac{r_s^2}{6D_s}$

(r_s = SiC-Schichtdicke, D_s = Diffusionskoeffizient) sowie der Nachrechnung des zeitlichen Verlaufs der Freisetzung ermittelt.

DIE Brennelement-Spaltproduktbarrieren des Kugelhaufen-Hochtemperatur-Reaktors im hypothetischen Störfall

K. Petersen, W. Schenk, R. Büscher

Kernforschungsanlage Jülich
Postfach 1913
5170 Jülich 1

Zur Ermittlung des "Restrisikos" und max. möglichen Schadensumfangs des Hochtemperaturreaktors werden in der KFA Jülich probabilistische und deterministische Analysenmethoden angewendet. Schon während der Planung geben diese Analysen wichtige Hinweise auf Möglichkeiten und Grenzen der Ertüchtigung des Reaktorsystems für die Beherrschung extremer Unfälle.

Die Frage nach den max. möglichen radiologischen Auswirkungen ist eng verbunden mit dem möglichen Ausmaß der Schädigung der gestaffelten Spaltproduktbarrieren Brennelement, Primärkreiseinschluß und Reaktorschutzgebäude (RSG) unter Unfallbedingungen und insbesondere bestimmt durch den Grad der Entkopplung der möglichen Schädigungsmechanismen. Eine Schlüsselfunktion nimmt hierbei das Brennelement ein:

Im Kern des 500 MW_{th}-PNP-Prototypreaktors z. B. befinden sich ca. 700 000 Brennelementkugeln mit insgesamt ca. 10^{11} beschichteten Teilchen, die das Brennstoff- bzw. Spaltproduktinventar einschließen. Da eine Freisetzung eines wesentlichen Teils des Spaltproduktinventars aufgrund mechanischer und korrosiver Einwirkung nach heutigem Kenntnisstand auszuschließen ist, kommt als einzige Ursache für massive Freisetzung die Aufheizung des Cores in Betracht.

Innerhalb der deterministischen und probabilistischen Störfallanalysen spielen daher Coreaufheizstörfälle eine dominierende Rolle. Der Zustand des Primärsystems ist hierbei gekennzeichnet durch den Ausfall aller Kühlsysteme incl. derjenigen des Liners bei druckentlastetem Primärkreis /1/.

Die Kerntemperaturen stabilisieren sich unter diesen Bedingungen nach 1 bis 3 Tagen hauptsächlich durch Wärmeabstrahlung in die speichernde Kernstruktur. Im Kern freigesetzte Spaltprodukte können infolge Diffusion und schwacher Konvektion über die Primärkreisöffnung in das RSG gelangen. Feste Spaltprodukte wie Cs und Sr werden auf diesem Freisetzungspfad nahezu vollständig abgelagert /1/.

Experimente zur Spaltproduktfreisetzung bei extremen Temperaturen

Die Spaltproduktfreisetzung aus Brennelementkugeln wird durch die drei Diffusionsbarrieren Brennstoffkern, Beschichtung und Matrixgraphit behindert. Ausheizversuche /2/ an 3 verfügbaren Brennelementsorten, die im AVR-Reaktor bestrahlt worden waren (Tab. 1), zeigen den Einfluß der Kernzusammensetzung und der Art der Umhüllung (Coating) auf die Hochtemperaturrückhaltung.

In Abb. 1 ist das Freisetzungsverhalten dieser 3 Brennelementsorten dargestellt, wie es bei Simulation einer für den Coreaufheizstörfall typischen Temperaturtransiente [1] experimentell ermittelt wurde. Aufgetragen sind die mittleren Freisetzungskurven und für die GO und GFB-2-Brennelemente auch die Schwankungsbreiten.

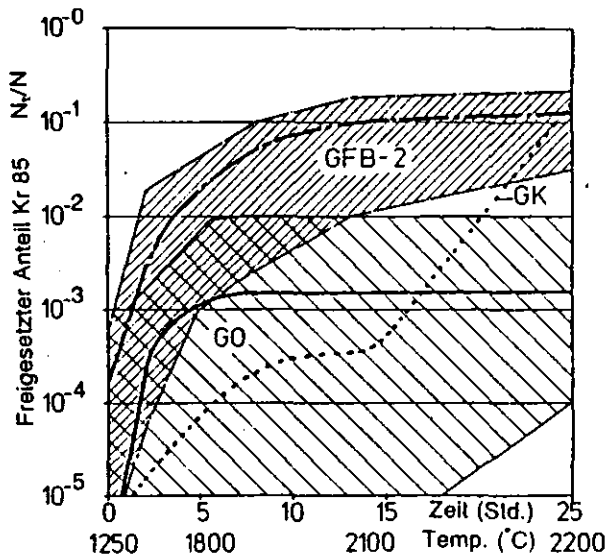


Abb. 1:
Streubereiche der gemessenen
Kr 85-Freisetzung aus geheiz-
ten Kugelbrennelementen

Spaltgase und das sich ähnlich verhaltende Jod werden von U,Th-Mischoxidpartikeln mit Coatings aus pyrolitischem Kohlenstoff, der bei 2000°C aus Methan abgeschieden wurde (GO bzw. THTR), bis 2400°C sehr gut zurückgehalten (Tab. 2). Erst ab etwa 2500°C werden größere Partikelmengen defekt und setzen das entsprechende Spaltgasinventar frei.

In GK-Mischkarbidpartikeln mit einer ähnlichen Beschichtung wie die der GO- bzw. THTR-Partikeln ist die Rückhaltung für Spaltgase bis 2000°C sehr gut. Bei etwa 2000°C beginnt anders als bei den Oxidpartikeln das Kernmaterial in die Beschichtung zu diffundieren und zerstört dabei deren Gefüge.

Bei GFB-2-Brennelementen mit UO_2 -Abbrandpartikeln, die eine zusätzliche Zwischenschicht aus SiC und eine äußere bei etwa 1300°C aus Propen abgeschiedene PyC-Schicht besitzen (LTI-TRISO), wird die SiC-Schicht bereits bei 1500°C defekt und die bis etwa 2300°C intakte äußere LTI-Schicht hält Spaltgase nicht so gut zurück wie HTI-Schichten.

Die Rückhaltung von Cäsium ist in Partikeln des GO- bzw. THTR-Typs unterhalb 2000°C vergleichsweise am besten (Tab. 2). Beim GK-Brennelement wird als Hauptursache für die hohe Freisetzung die geringe Rückhaltung des Brennstoffkernes für Cäsium angesehen. Aus GFB-2-Brennelementen wird wegen der innerhalb 50 Std. bei 1500°C defekt gewordenen SiC-Schichten der Partikeln 42 % des Cäsiums freigesetzt.

Mittlerweile wurden Partikeln, deren SiC-Schichten bei hohen Abbränden ein besseres Bestrahlungsverhalten als die untersuchte Variante zeigte, hergestellt. Deren Hochtemperaturverhalten konnte jedoch noch nicht untersucht werden.

Temperaturbelastung der Brennelemente im Coreaufheizstörfall

Die transiente Temperaturbelastung der Brennelemente im hypothetischen Coreaufheizstörfall wird bei unterstelltem andauerndem Ausfall aller Kühlsysteme, durchkühltem Core und Abschaltung nach längerem Vollastbetrieb im wesentlichen nur noch bestimmt durch die Coregeometrie und die Coreleistungsdichte.

Abb. 2 gibt einen Vergleich der im Coreaufheizstörfall maximal und nach 100 h zu erwartenden Brennelement-Temperaturspanne für verschiedene Coregeometrien eines 1500 MW_{th}-Kugelhaufenreaktors mit derjenigen des 500 MW_{th}-PNP-Prototypreaktors /1/. Ausgehend von einem Core mit 5,5 MW/m³ Leistungsdichte, dessen Brennelemente z.T. heißer als 2500°C werden, zeigt sich, daß eine Verringerung der Leistungsdichte bei 1,4 m Durchmesser-Vergrößerung, deutlicher noch die Verwendung einer Graphitmittelsäule bei gleicher Durchmesser-Vergrößerung und ursprünglicher Leistungsdichte eine effektive Temperaturbegrenzung unter 2500°C bewirken können. Die Vergrößerung der Mittelsäule von 5 auf 7,6 m Durchmesser bringt eine vergleichsweise geringe Verbesserung.

Der Vergleich dieser coregeometrieabhängigen Brennelementtemperaturen mit den experimentell ermittelten Versagenstemperaturen der Spaltproduktbarrieren des Brennelements zeigt die Möglichkeit auf, in fortgeschrittenen Reaktorsystemen die Core- und Brennelementauslegung so aufeinander abzustimmen, daß die Spaltproduktfreisetzung in extremen Störfällen wegen quantitativen Intaktbleibens der Partikelcoatings als wichtigster Spaltproduktbarriere im wesentlichen auf den Primärkreis des Reaktors begrenzt bleibt. Dies gilt bei Anwendung der Mittelsäulencoregeometrie auch für Kugelhaufencores großer Leistung.

LITERATUR

- /1/ Petersen, K. et al.:
The Fission Product Retention of Pebble-Bed Reactors
in Ultimate Accidents, KFA, IRE-11/78, Veröffentlichung
in Nuclear Technology in Vorbereitung
- /2/ Schenk, W.:
Untersuchungen zum Verhalten von beschichteten Brennstoffteilchen und Kugelbrennelementen bei Störfalltemperaturen, JÜL-1490, Diss., Mai 1978

1. Cäsium

| Temp. °C | GO | GFB | GK |
|-------------|-----|-----|-----|
| 1500 | ++ | - | - |
| 1600 | ++ | - | - |
| 1700 | + | - | - |
| 1800 | - | - | - |
| 1900 | - | --- | --- |
| 2000 | --- | --- | --- |

| Typ | GO (THTR) | GK | GFB | |
|----------------|----------------------|----------|-----------------|------------------|
| | | | Abbrand | Brut |
| Brennstoff | (U,Th)O ₂ | (U,Th)C | UO ₂ | ThO ₂ |
| Umhüllung | HTI-BISO | HTI-BISO | TRIISO | LTI-BISO |
| Partikeln/BE | 20800 (38600) | 23700 | 24500 | 10100 |
| Abbrand % fima | 4...16 | 12...17 | 4...52 | 5...05 |

2. Barium ähnliches Verhalten wie Cäsium

Tab. 1: AVR-BE im Höchsttemperaturver-
such

3. Edelgase

| Temp. °C | GO | GFB | GK |
|-------------|----|-----|-----|
| 1500 | ++ | ++ | ++ |
| 1800 | ++ | + | ++ |
| 2000 | ++ | + | + |
| 2200 | ++ | - | - |
| 2400 | ++ | --- | --- |
| 2500 | -- | --- | --- |

4. Jod ähnliches Verhalten wie Edelgase

- ++ 50 Std. < 1%
- + 50 Std. < 10%
- 50 Std. > 40% Freis.
- 10 Std. > 50% Freis.

Tab. 2: Spaltproduktfreisetzung aus
Kugelbrennelementen bei hohen
Temperaturen

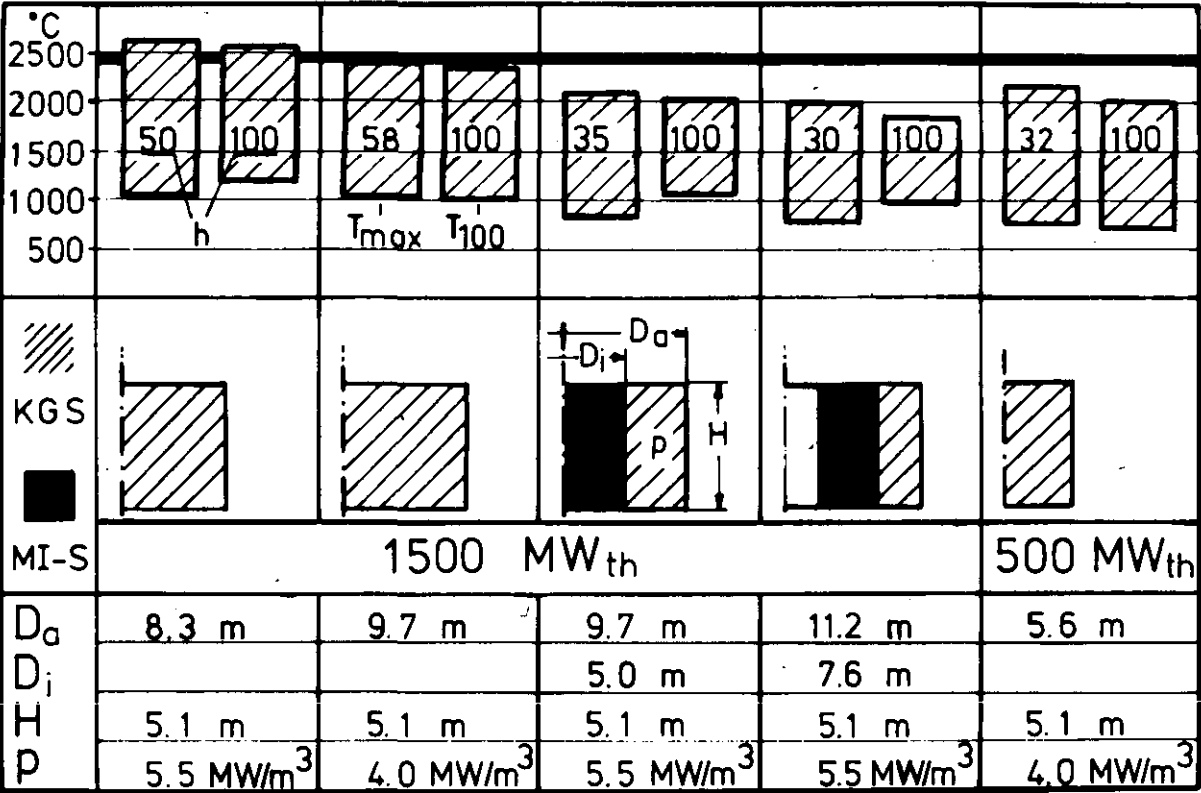


Abb. 2: Temperaturen des Kernaufheizstörfalls bei verschiedenen Coregeo-
metrien

ENTSORGUNG DES AVR-VERSUCHSKERNKRAFTWERKS UND UNTERSUCHUNGEN IN ABGEBRÄNNTEN BRENNELEMENTEN FÜR TROCKENE ZWISCHENLAGERUNG

U. Brinkmann, R. Duwe, R. Engelstädter,
S. Storch,

Kernforschungsanlage Jülich GmbH

M. Wimmers,
Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor (AVR) GmbH, Jülich

Teil I

Planung und Stand der Entsorgung des AVR-Versuchskernkraftwerks

1. Einleitung

Das AVR-Versuchskraftwerk ist seit Dezember 1967 in Betrieb. Bei einer elektrischen Leistung von 15 MW werden täglich ca. 50 frische Brennelemente zugegeben und seit Erreichen des Gleichgewichtscores - Anfang 1973 - ebenso viele abgebrannte Brennelemente entnommen. Diese Brennelemente werden zu je 50 Stück in Edelstahl-Kannen abgefüllt, aus dem Entnahmeraum des AVR geschleust und abgeschirmt zur KFA transportiert. Bei einer Verfügbarkeit des Reaktors von 85 % fallen jährlich ca. 17.000 abgebrannte Brennelemente an.

Die Besonderheiten des AVR, u.a.:

- die Verwendung von kugelförmigen Brennelementen mit hochangereicher-tem Uran in Uran/Thorium-Mischpartikeln und
- die mehrfache Verlängerung der Betriebszeit, bedingt durch die wechselnden Aufgaben des Versuchs-Reaktors für die HTR-Entwicklung, derzeitiges Betriebsende 1983,

verlangen ein eigenes und flexibles Entsorgungskonzept.

Eigentümerin der Brennelemente ist die KFA Jülich. Hieraus und aus der Nähe vorhandener kerntechnischer Einrichtungen der KFA erklärt sich die enge Zusammenarbeit zwischen AVR GmbH und der KFA bei der Entsorgung des Reaktors.

2. Entwicklung des Entsorgungskonzepts

Bei der Errichtung des AVR wurde kein sog. Reaktorlager für die abgebrannten Brennelemente geschaffen. Es bestand jedoch die Absicht, ein separates Zwischenlager in Verbindung mit einer Versuchsanlage zur Wiederaufarbeitung von AVR-Brennelementen zu bauen. Für diese sog. JUPITER-Anlage konnte jedoch ein Teil der Heißen Zellen nach Leerräu-

mung und Dekontamination bereitgestellt werden. Für die Zwischenlagerung der Brennelemente wurde ebenfalls auf eine vorhandene Einrichtung, dem Wasserbecken der Heißen Zellen, zurückgegriffen.

Im Jahre 1973 wurde weiterhin das Programm zur Versuchsendlagerung von AVR-Brennelementen im Salzbergwerk ASSE II entwickelt. Zusammen mit der Versuchsanlage JUPITER hätte seinerzeit eine ausreichende Kapazität für die Entsorgung des AVR zur Verfügung gestanden. Die Einstellung der Einlagerung radioaktiver Abfälle in der ASSE und die Verzögerungen beim Bau der JUIPTER-Anlage verlangten eine völlige Überarbeitung des Entsorgungskonzepts. Die beiden Entwicklungsvorhaben - Wiederaufarbeitungs- und Endlagerversuche - gehören zwar weiterhin zum Entsorgungsprogramm, ihr möglicher Beitrag kann jedoch wegen der zeitlichen Unsicherheiten zahlenmäßig nicht berücksichtigt werden.

Das neue Entsorgungskonzept ist in Abb. 1 dargestellt.

Es sieht zunächst eine Zwischenlagerung in Naß- und Trockenlagern der KFA vor, wobei vorhandene Anlagen durch entsprechende Zusatzeinrichtungen dem Bedarf angepaßt und wirtschaftlich optimal verbunden wurden.

Bau und späterer Betrieb des THTR-300 sind eng verknüpft mit der Entsorgungsplanung für dessen abgebrannte Brennelemente. Hierfür ist ein Trockenlager, das sog. HTR-Zwischenlager, geplant. Es wurde auch für die mittelfristige Lagerung von ca. 310.000 abgebrannter AVR-Brennelemente ausgelegt. Wegen denkbarer Verschiebungen der Termine bei diesem HTR-Zwischenlager muß u.U. noch ein weiteres Trockenlager für AVR-Brennelemente eingerichtet werden.

| | Kapazität | Füllstand (31.12.79) |
|-----------------------|-----------|----------------------|
| Wasserbecken HZ | 65.000 | 47.000 |
| DIDO | 28.500 | 28.500 |
| Trockenlager AVR-TL I | 72.000 | - |
| AVR TL II | 144.500 | - |
| <hr/> | | |
| HTR-Zwischenlager | 310.000 | |

Mit dem im Bau befindlichen AVR-TL I ist die Entworgung des AVR-Reaktors bis mindestens 1983 möglich. Seine Kapazität beträgt 72.000 BE.

Mit Inbetriebnahme eines zweiten Trockenlagers könnten auch die Brennelemente des Reaktorkerns gelagert werden, so daß die Bau- und Inbetriebnahmezeiten des HTR-Zwischenlagers nur in Abhängigkeit von den Auslagerungserfordernissen abgebrannter Brennelemente des THTR-300 festzulegen wären.

3. Technische Beschreibung

Seit April 1973 werden Brennelement-Kannen im WB-Heiße Zellen eingelagert.

Abb. 2 zeigt eine Ansicht des Wasserbeckens mit der Beschickungsanlage und dem Transportbehälter.

Zur Strahlenabschirmung nach oben dienen ca. 3 m Wasserschicht und zur Seite Stahlblech sowie 60 cm Beton. Aufgrund des Eisenanteils bei den Kannen und den Lagergestellen als Neutronenabsorber ist eine kritisch sichere Lagerung dieser Kannen in kompakter Anordnung möglich (Abb. 3). Die Wärmeabfuhr von max. 10 kW erfolgt ohne Nutzung des Kühlkreislaufs im wesentlichen nur durch Verdunstung. Die stationäre Wassertemperatur liegt zwischen 30 - 35° C.

Daneben ist das kleinere Wasserbecken in der Technikumshalle des DIDO seit Ende 1978 vollständig mit 28.500 Brennelementen beladen. Die technischen Einrichtungen sind ähnlich wie im WB-Heiße Zellen. Die Beschickung erfolgte mit einem Abschirmbehälter, der einige cm in das Wasser eingetaucht wurde.

Innerhalb der Abfallzellen der KFA steht eine Zelle zur Verfügung, die teilweise für die Aufstellung von kompakten Lagergestellen verwendet werden kann (Abb. 4). Ursprünglich war diese Zelle nur zur vorübergehenden Lagerung von endlagerfähigen, mittelradioaktiven Abfallfässern vorgesehen. Bei der Auslegung des Trockenlagers wurden folgende Daten als Referenz für das AVR-Brennelement zugrundegelegt:

| | | |
|---------------------|--------|--------------------|
| - Brennstoffeinsatz | | 1 g U 235 |
| | 5 bzw. | 10 g Th 232 |
| - Abbrand | 5 - | 15 % fima |
| - Abklingzeit | | 2 Jahre |
| - Aktivität | 13 - | 17 Ci/Brennelement |
| - Zerfallswärme | | 0,1 W/Brennelement |

Die Brennelemente werden nach ihrer Sortierung in den Heißen Zellen in Edelstahl-Kannen zu 1.000 Stück abgefüllt und mittels Abschirmbehälter zu den Abfallzellen transportiert. Das Einschleusen und Abstellen der Kanne wird fernbedient mit elektrisch betriebenen Vorrichtungen durchgeführt.

Abb. 5 zeigt einen Querschnitt der Zelle mit den Beschickungseinrichtungen, den Lagergestellen und den Lagerkannen.

Die Zelle wird mit ca. 2.000 m³/h be- und entlüftet. Die Wärmemenge von max. 7 kW wird im wesentlichen durch freie Konvektion an die Zellenluft abgeführt. Die Temperatur an den Kannenoberflächen beträgt ca. 100° C. Die erwärmte Abluft wird über Absolutfilter in 16 m Höhe an die Umgebung abgegeben. Während der etwa dreijährigen Beschickung des Lagers akkumuliert sich die Gesamtaktivität von maximal 8×10^5 Ci. Die Abschirmwände bestehen aus 1,3 m Beton der Dichte 2,3 g/cm³. Die Freisetzung von festen Spaltprodukten wird durch mehrere Rückhaltebarrieren verhindert. Nur die geringe Emission von Krypton 85 und Tritium liefert einen Beitrag zur radiologischen Umgebungsbelastung von $< 2,4$ Ci/a. Die Kritikalitätsrechnungen wurden für frische Brennelemente durchgeführt. Unter Einbeziehung des Eisenanteils von Kanne und Lagergestell wurde ein $K_{00} < 0,85$ ermittelt.

Die atomrechtliche Genehmigung für dieses Trockenlager wurde im Mai 1979 beantragt. Die Erteilung der Genehmigung wird für die 2. Hälfte 1980 erwartet. Die Beschickung des Trockenlagers ist für Anfang 1981 vorgesehen.

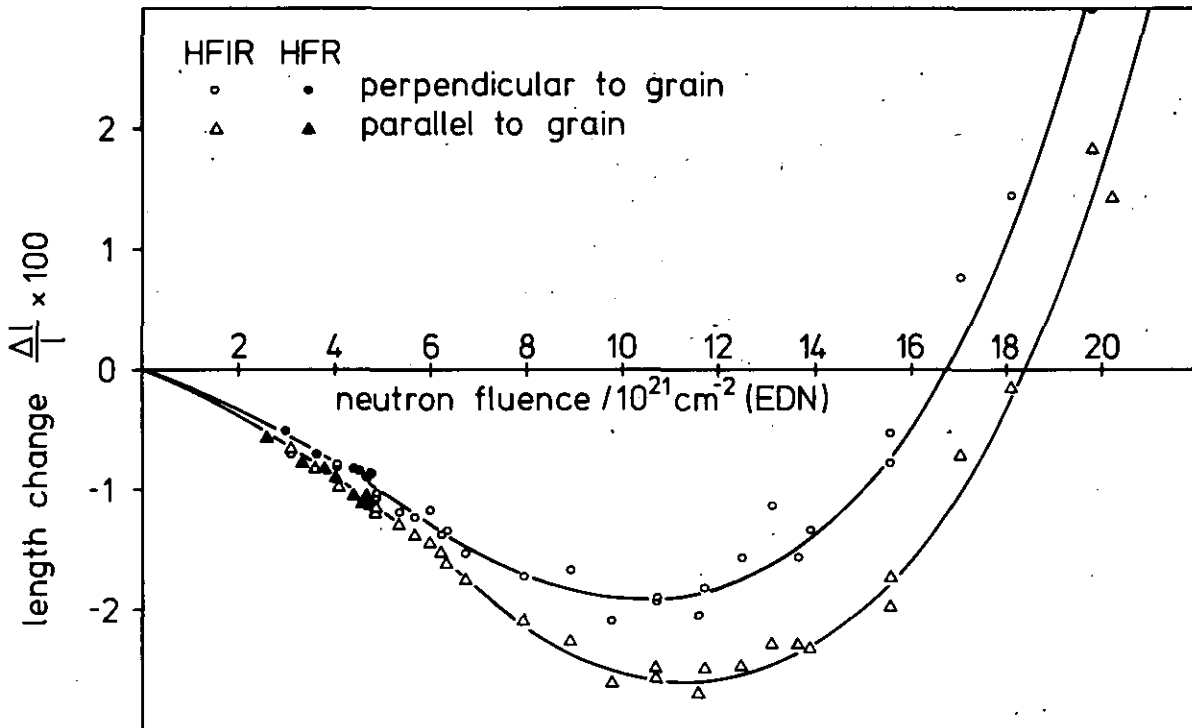


Abb. 1: Dimensionsänderungen der Graphitsorte ATR-2E durch Bestrahlung in den Reaktoren HFIR Oak Ridge und HFR Petten bei 600° C

Wesentliche Fortschritte konnten bei der Herleitung des Bestrahlungsverhaltens von Graphit bei wechselnden Temperaturen aus dem Verhalten bei konstanten Temperaturen erzielt werden. Die meisten Bestrahlungsexperimente mit Kleinproben werden isotherm durchgeführt. Ihr Ergebnis sind Kurvenscharen, die die Änderung von Materialeigenschaften mit der Neutronenfluenz und mit der Bestrahlungstemperatur als Parameter beschreiben.

Abb. 2a zeigt als Beispiel die Längenänderung von Graphit bei den Bestrahlungstemperaturen 600° und 1000° als Funktion der Fluenz x . Wird eine Probe zunächst bei 600° bis zur Fluenz x_1 bestrahlt und erfolgt dann ein plötzlicher Übergang zur Bestrahlungstemperatur 1000°, so gab es bisher zwei Verfahren, um das weitere Verhalten aus den Isothermen vorherzusagen.

Im einen Verfahren wurde nach Abb. 2b die 1000°-Isotherme so weit vertikal verschoben, daß sie bei der Fluenz x_1 mit der 600°-Isothermen zusammenfällt ("Equal-Fluence-Method"). Dieses Verfahren ist jedoch nicht auf solche Materialeigenschaften anwendbar, die maßgeblich durch die Konzentration von Punktdefekten bestimmt werden, wie z.B. die Wärmeleitfähigkeit.

ENTSORGUNG DES AVR-VERSUCHSKERNKRAFTWERKS
UND UNTERSUCHUNGEN IN ABGEBRANNTEN BRENNELEMENTEN
FÜR TROCKENE ZWISCHENLAGERUNG

U. Brinkmann, R. Duwe, R. Engelstädter,
S. Storch

Kernforschungsanlage Jülich GmbH

M. Wimmers

Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor (AVR) GmbH, Jülich

Teil 2

Experimentelle Untersuchungen an abgebrannten HTR-Brennelementen

Mein Vorredner hat Ihnen in seinem Vortrag einen Überblick über die Entsorgungssituation beim AVR-Versuchskernkraftwerk - dem ersten in der Bundesrepublik betriebenen Hochtemperaturreaktor - gegeben. Daraus konnten Sie ein Bild gewinnen über die Mengen der entladenen AVR-Brennelementkugeln und der verwendeten bzw. geplanten Lagertechniken.

Ich möchte nun über ein Experimentalprogramm der KFA berichten, aus dem die Lagergut-Daten für die Lagerprojekte für abgebrannte kugelförmige Brennelemente gewonnen werden und zwar nicht nur für solche aus dem AVR- sondern auch für solche wie sie später aus dem THTR-Kernkraftwerk und gegebenenfalls Folgeanlagen anfallen.

Beschränken werde ich mich auf Arbeiten, die sich auf die trockene Zwischenlagerung beziehen und Ihnen dazu einige erste Ergebnisse aus dem seit 1978 laufenden Versuchsprogramm vorstellen.

Lassen Sie mich einige kurze Anmerkungen zu den Brennelementen zu Ihrer Orientierung voranstellen. Bei dem verfügbaren Untersuchungsmaterial handelt es sich zunächst um die - wie vorhin gesagt - seit 1973 aus dem AVR programmäßig entladenen Elemente des Erstcores: mit Pyrokohlenstoff umhüllte Uran-Thorium-Karbidteilchen, zusammen mit Grafitpulver und Binder in Kugelschalen aus Elektrografit eingefüllt. Vor allem aber stehen zur Verfügung die aus einer einheit-

lichen A-3-Grafitmatrix gepreßten Elemente mit anfänglich noch karbidischen, später oxidischen Uran-Thorium-Teilchen, Brennelemente, wie sie zum Beispiel bereits mit etwas erhöhter Schwermetall-Beladung als komplett gefertigtes Erstcore für das THTR-Kraftwerk bereitstehen.

Die verschiedenen, zum Teil als Versuchschargen in den AVR-Reaktor eingesetzten Element-Typen liegen im Abbrand bis zu 19% fima und mit unterschiedlichen Abklingzeiten vor. Beim THTR-Brennelement, das zu 20 000 Stück zur Erprobung im AVR eingesetzt wurde, liegt der derzeitige Abbrand maximal etwas über 6% fima.

Die wesentlichen der für die Lagerung relevanten Eigenschaften der Elemente wie Nachwärme- und Dosisleistung und das Freisetzungsverhalten werden durch das laufende Untersuchungsprogramm abgedeckt.

Die Ergebnisse werden für Auslegung und Betrieb der Trockenlager für teils längerfristige Zwischenlagerung bereitgestellt und stützen bzw. verbessern die zum Teil sehr konservativen rechnerischen Voraussetzungen zum Verhalten der zu lagernden Brennelemente unter Betriebs- und Störfallbedingungen.

Es sei erwähnt, daß bei den Eigenschaften Nachwärme- bzw. Dosisleistung der chemische Zustand der Spaltstoffe bzw. -produkte in den beschichteten Teilchen - ob Oxid oder Karbid - keine Rolle spielen sollte. Selbst bei dem evtl. durch chemischen Zustand beeinflussten Spaltprodukttransport d.h. dem Freisetzungsverhalten der Brennelemente hat in dem hier infrage kommenden Temperaturregime unterhalb 200°C dieser Unterschied kaum eine Bedeutung - es sei denn, karbidische Brennstoffkerne wären nennenswert und direkt feuchter Atmosphäre ausgesetzt, wogegen aber die Hüllschichten weiterhin eine wirksame Barriere bilden.

Das Abklingen der genannten Eigenschaften abgebrannter Elemente nach ihrer Entladung aus dem Reaktor sei am Beispiel des mit Hilfe von ORIGEN-Rechnungen ermittelten Nachwärmeleistungsverlaufs kurz in Abb. 6 aufgezeigt.

Sie sehen hier den Wärmeleistungsverlauf für Elemente mit den Abbränden 7.3, 11.3 und dem maximal erwarteten Abbrand von 15% fima im THTR

Dazu ist der Wärmeleistungsverlauf für Brennelemente mit 12% fima aus dem AVR eingetragen. Sie haben bereits von meinem Vorredner gehört, daß beim ersten in Betrieb gehenden Trockenlager für AVR-Elemente ohne direkte Zwangskühlung eine Vorlagerzeit von 2a zugrunde gelegt wurde. Das geplante größere Zwischenlager für AVR- und THTR-Brennelemente, das HTR-ZL - ebenfalls mit Naturzug - geht von einer Mindestvorlagerzeit von 200d aus.

Zur Nachprüfung der ORIGIN-Rechenaussagen zur Nachwärme- und Gammadosisleistung wurden 17 verschiedene, aus dem AVR entladene Elemente mit 4-16% fima Abbrand und Abklingzeiten zwischen 150 Tagen bis zu mehr als 4 Jahren ausgewählt und vermessen. Wie die Abb. 7 zeigt, besteht für die Nachwärmewerte bis auf Abweichungen bei der für die Zwischenlagerung weniger relevanten kurzen Abklingzeit von 150 Tagen eine gute Obereinstimmung zwischen Meßergebnis und den Werten aus den ORIGIN-Rechnungen. Die gegen die Rechenergebnisse kleineren Meßwerte bei 150 Tagen demonstrieren den hier bewußt pessimistisch ausgelegten Rechengang.

Die an denselben Brennelementen gemessenen Dosisleistungen entsprachen ebenfalls gut den ORIGIN-Werten.

AVR-

Für eine Menge von 1000 Elementen als maximaler Füllung einer Kanne wie sie für das AVR-Trockenlager benutzt werden soll ergibt sich auf Basis der Einzelmessungen für einen Abbrand von 15% fima der in Abb. 8 dargestellte zeitliche Verlauf der Nachwärme von 105 Watt nach 1 Jahr Abklingzeit auf 28 Watt nach 10 Jahren.

Eine solche mit maximal 100 Watt angenommene Lagerkanne (tatsächlich werden nur 2 Jahre alte Elemente zugelassen) entwickelt in dem Kompaktlagergestell des AVR-Trockenlagers bei Zuluft von 32°C maximal 106°C Oberflächentemperatur, die bei vollständiger Sperrung der Lagerzellen-Zu- und -Abluft auf maximal 140°C steigen könnte.

In dem Diagramm zusätzlich eingetragen ist der entsprechende zeitliche Verlauf der Gamma-Dosisleistung einer solchen Kanne in 1 m Abstand. Verwendet wurden dafür die Ergebnisse einer Gamma-Strahlenfeldmessung an einer Kanne, die mit 950 Brennelementen einer annähernd einheitlichen Abbrandklasse und Abklingzeit von 4 Jahren gefüllt war.

Da die Temperaturen der Brennelemente in den bisher ausgelegten trockenen Zwischenlagern 140°C auch im Störfall nicht überschreiten können, liegt der größte Anteil hochradioaktiver Spaltprodukte in fester, nicht freisetzbarer Form vor. Freigesetzt werden kann lediglich gasförmig vorliegende Aktivität und zwar Krypton-85 und Tritium. Dabei muß beachtet werden, daß der von intakten Partikelbeschichtungen umschlossene Anteil des Kryptons über 90% und ebenso ein im Grafitgitter gebundener, erheblicher Inventaranteil des Tritiums über 70% nicht freisetzbar sind.

In dem hierzu laufenden Labormessprogramm waren folgende Parameter zu beachten:

- Temperaturabhängigkeit der Freisetzung
- Feuchtigkeitsgehalt des Lagermediums, der Einfluß auf die Tritiumfreisetzung hat
- Abdampfbedingung des Gases bzw. der Partialdruck in den geschlossenen Behältern und schließlich
- der zu untersuchende Brennelementtyp und sein Abbrand- bzw. Abklingzustand

Die z.Zt. benutzte Apparatur (siehe Abb. 9) besteht aus den Komponenten

1. einem Stahlrohr-Ofen für 5 Elemente für Temperaturen bis 400°C
2. zwei heizbaren Stahlbehältern für je 20 Elemente
3. einem Gasspülkreislauf
4. einer Tritium-/Krypton-Meßanlage
5. einem Tritium-/Krypton-Fallensystem.

In dieser Apparatur konnte die Freisetzungskinetik von Krypton-85 und Tritium unter weitgehend realistischen Bedingungen untersucht werden. Mit den Temperaturstufen 40, 140 und 240°C sollte in dem 5-Kugel-Ofen die Temperaturabhängigkeit und darüber eine Aktivierungsenergie ermittelt werden. Die beiden Lagerbehälter wurden konstant auf 140°C bzw. 40°C gehalten entsprechend der Maximaltemperatur im AVR-Trockenlager bzw. gleichgroß errechneten im HTR-ZL. Die 40°C entsprechen einer angenommenen Betriebstemperatur in einem geologischen Lager.

Eine Spülung der Apparatur ist sowohl mit "offenem" Kreislauf, d.h.

freiem Abdampfen in frisch zugeführtes Spülgas als, auch in geschlossenem Kreislauf für Entnahme eines Aliquots beim Umwälzen des Ofen- bzw. Behältergases möglich. Als Spülmedium wird definiert angefeuchtete Raumluft benutzt. Die Analyse des Gases erfolgt nach Beimischung von Methan in großvolumigen Durchflußzählern, wobei sich als vorteilhaft erwiesen hat, zwei Zähler mit zwischengeschalteter Tritiumfalle zu benutzen. In Abb. 10 sehen sie nun das

Freisetzungsverhalten von gepreßten oxidischen AVR-Elementen in geschlossenen und offenen Behältern. Bei geschlossenen Behältern zeigt sich nach einigen Tagen eine meßbar geringere freigesetzte Menge als bei freiem Abdampfen. Gemessen wurde zunächst bei freiem Abdampfen bis zu 4 Tagen, wobei die Freisetzungsrate um eine Größenordnung sank. Bei längerer Meßzeit ist die Änderung nur noch gering. Unter der Annahme, daß die Freisetzungsrate dann konstant bleibt, könnte man die Freisetzung wie hier in der Abbildung gezeigt auf längere Zeiten, z.B. 100 Tage extrapolieren.

Vergleicht man die Werte mit den bei verschlossenen Behältern gemessenen, so stellt man fest, daß nach einigen Tagen wesentlich weniger in die Behälter freigesetzt wird als dies bei freiem Abdampfen zu beobachten ist. Zum einen kann dieser Effekt mit einem sich aufbauenden Partialdruck erklärt werden, zum anderen kann aber nicht ausgeschlossen werden, daß durch Inventarverarmung und Behälterleckrate ein weiterer Anstieg der Konzentration im Behältervolumen ausbleibt. Weitere Messungen sollen zur Klärung dieser Effekte durchgeführt werden.

Neben diesen Laborversuchen wird zur Zeit im AVR-Trockenlager ein begleitendes Meßprogramm aufgebaut. Darin wird insbesondere das Temperaturfeld des Kannenverbandes sowie die Freisetzung von Tritium und Krypton aus den einzelnen Positionen ermittelt. Zusätzlich wird an für Gasentnahme vorbereiteten Kannen der zeitliche Anstieg des Partialdrucks für Tritium und Krypton-85 bestimmt.

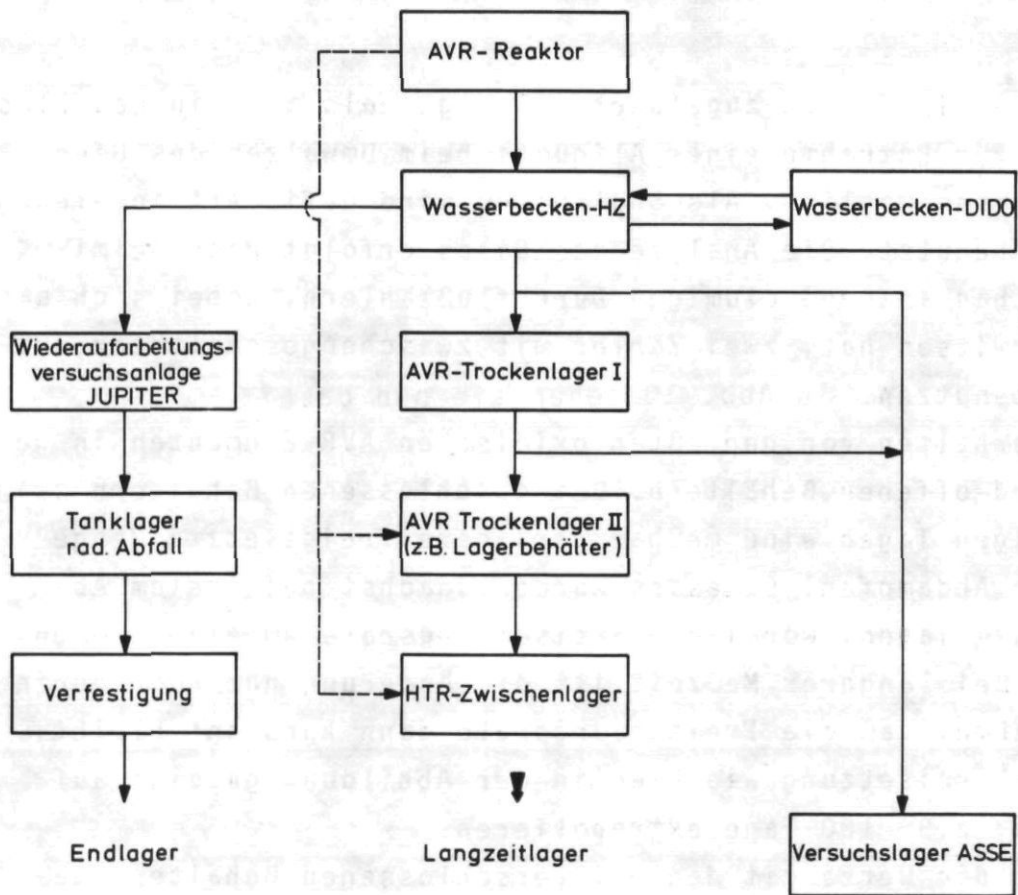


Abb.1:
Behandlung
abgebrannter
AVR-Brennelemente
Entsorgungsschema

Abb. 1: AVR-Entsorgungskonzept

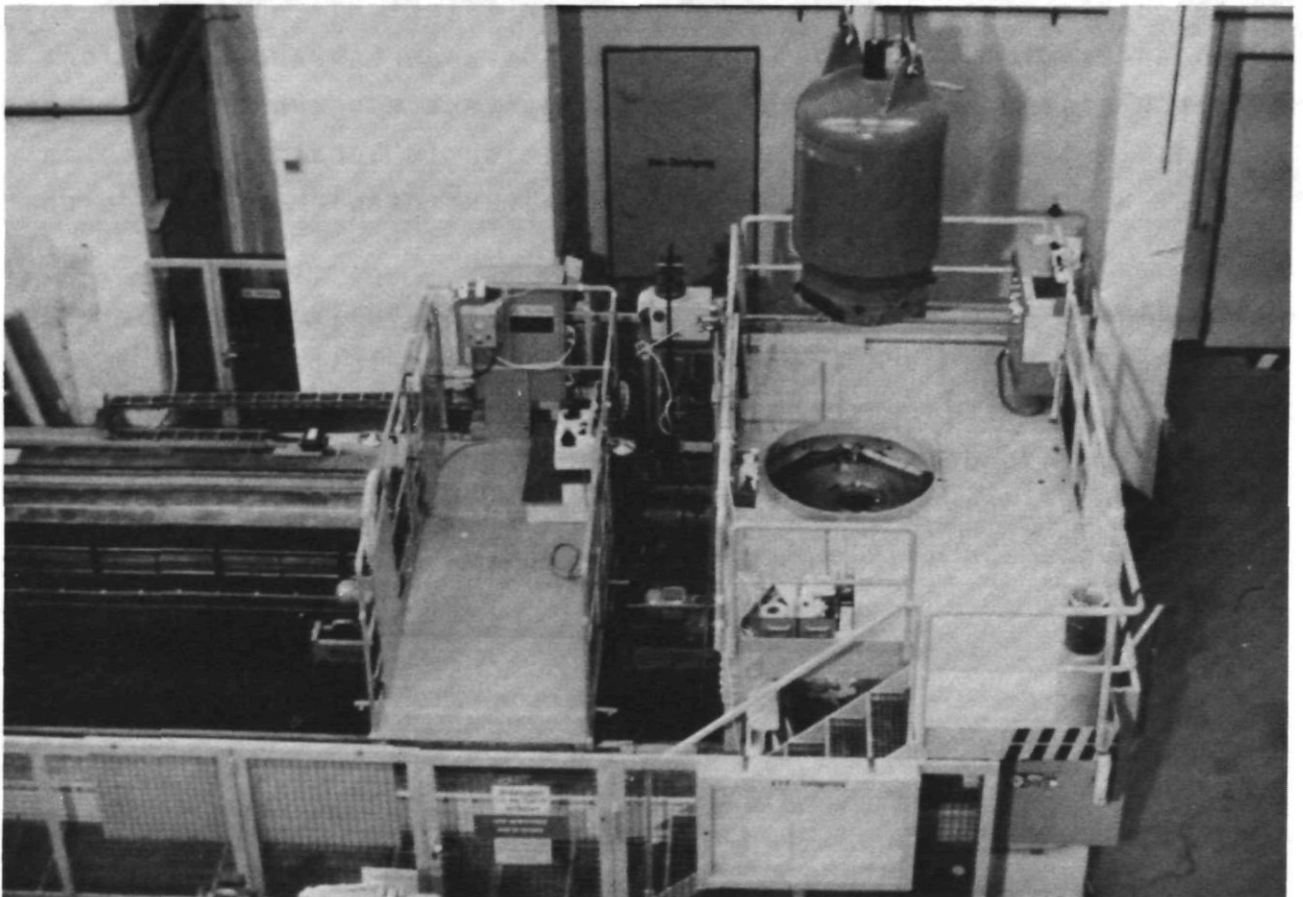


Abb. 2: Wasserbecken, Beschickungsanlage und Abschirmbehälter in den Heißen Zellen

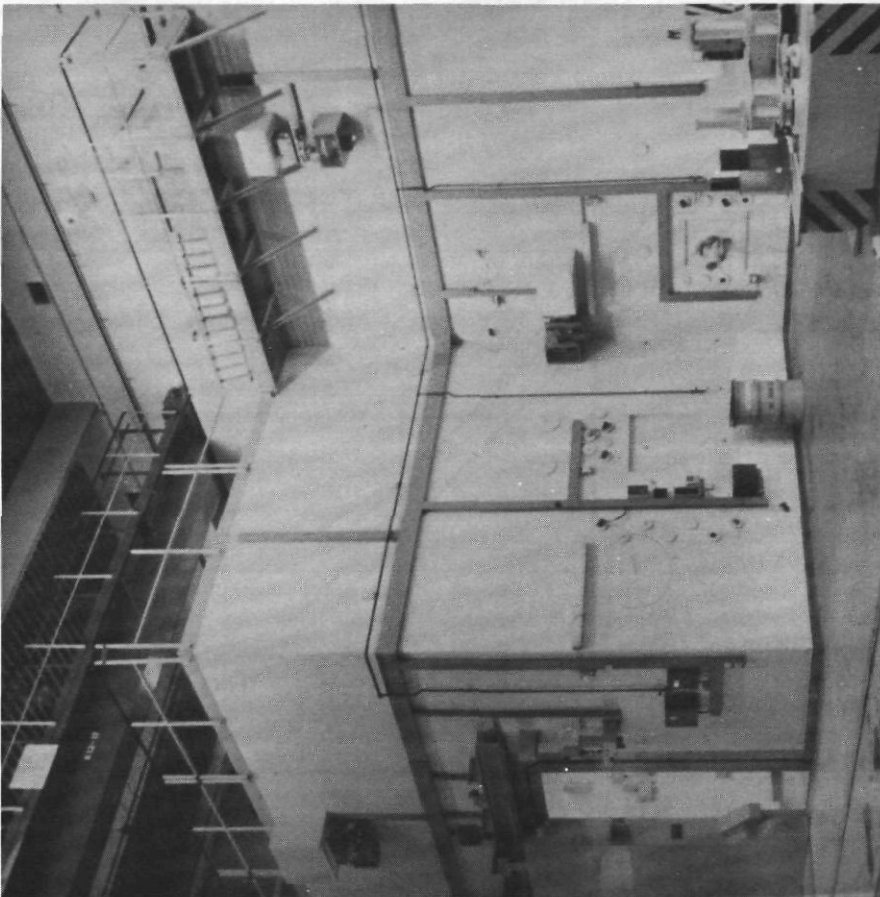


Abb. 4: Gesamtansicht der Abfallzellen

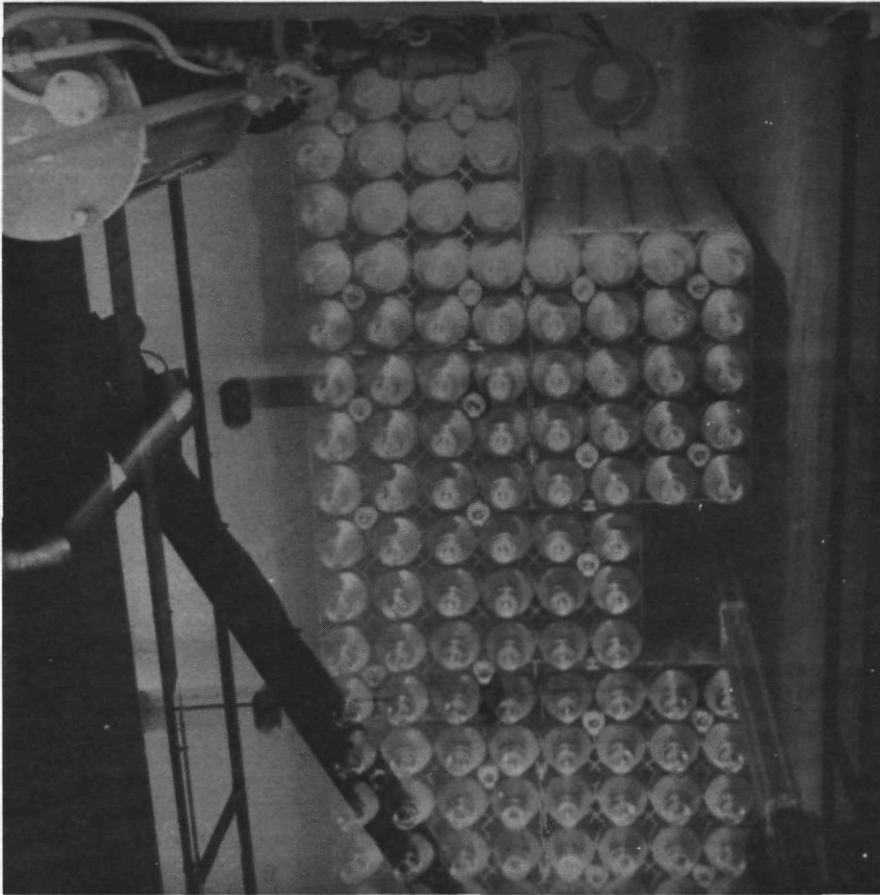


Abb. 3: Wasserbecken, Lagergestelle mit Brennelementkannen
in den Heißen Zellen

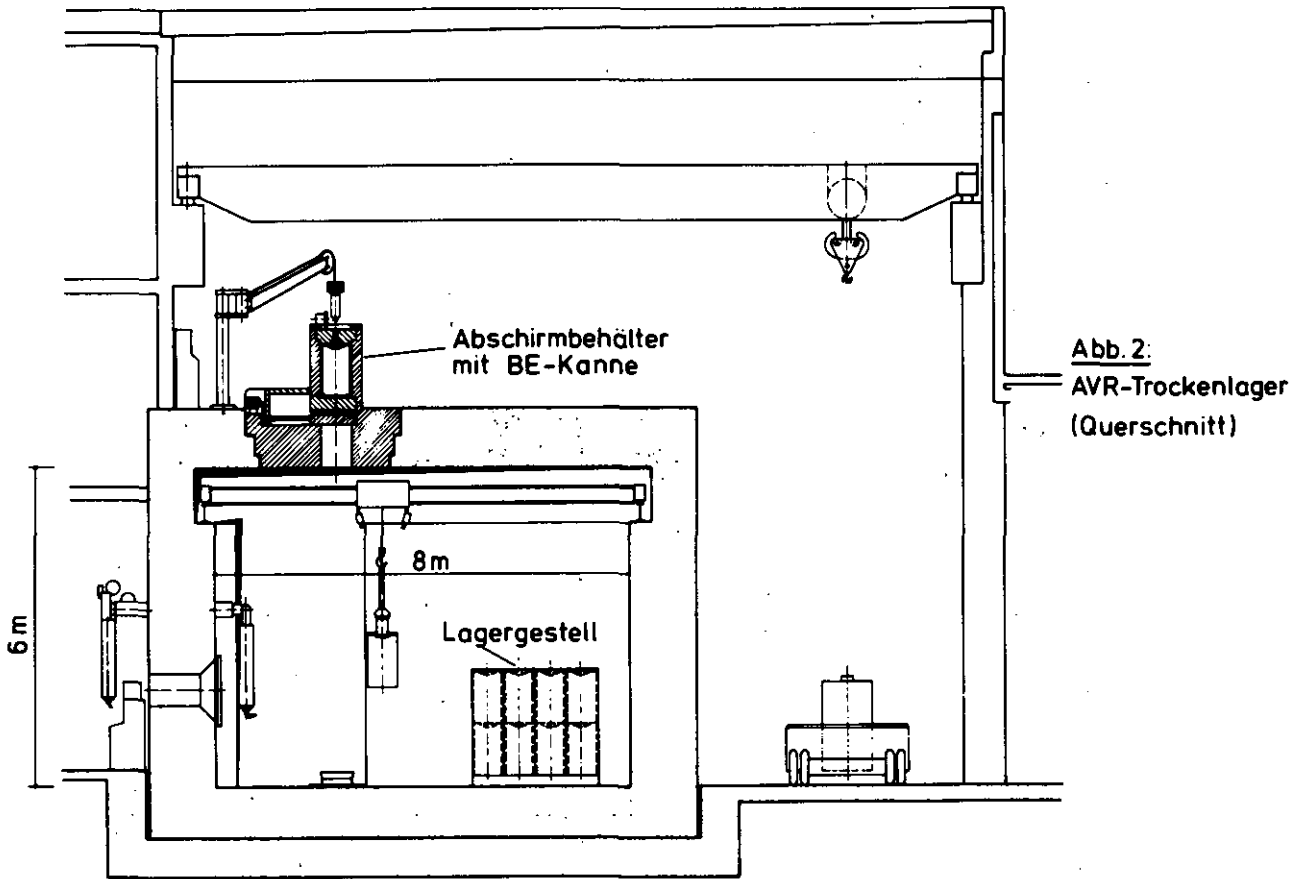


Abb. 5: Querschnitt der Lagerzelle

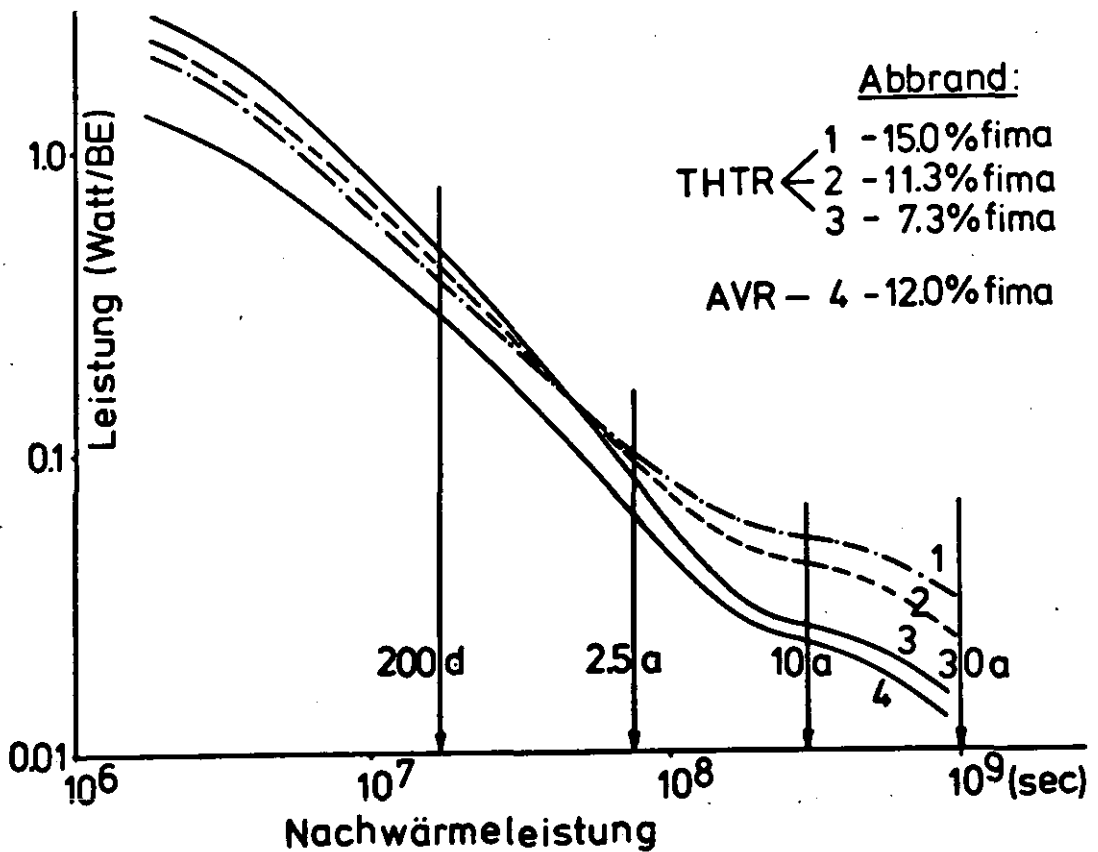


Abb. 6: Rechnerische Ermittlung des Verlaufs der Nachwärmeleistung

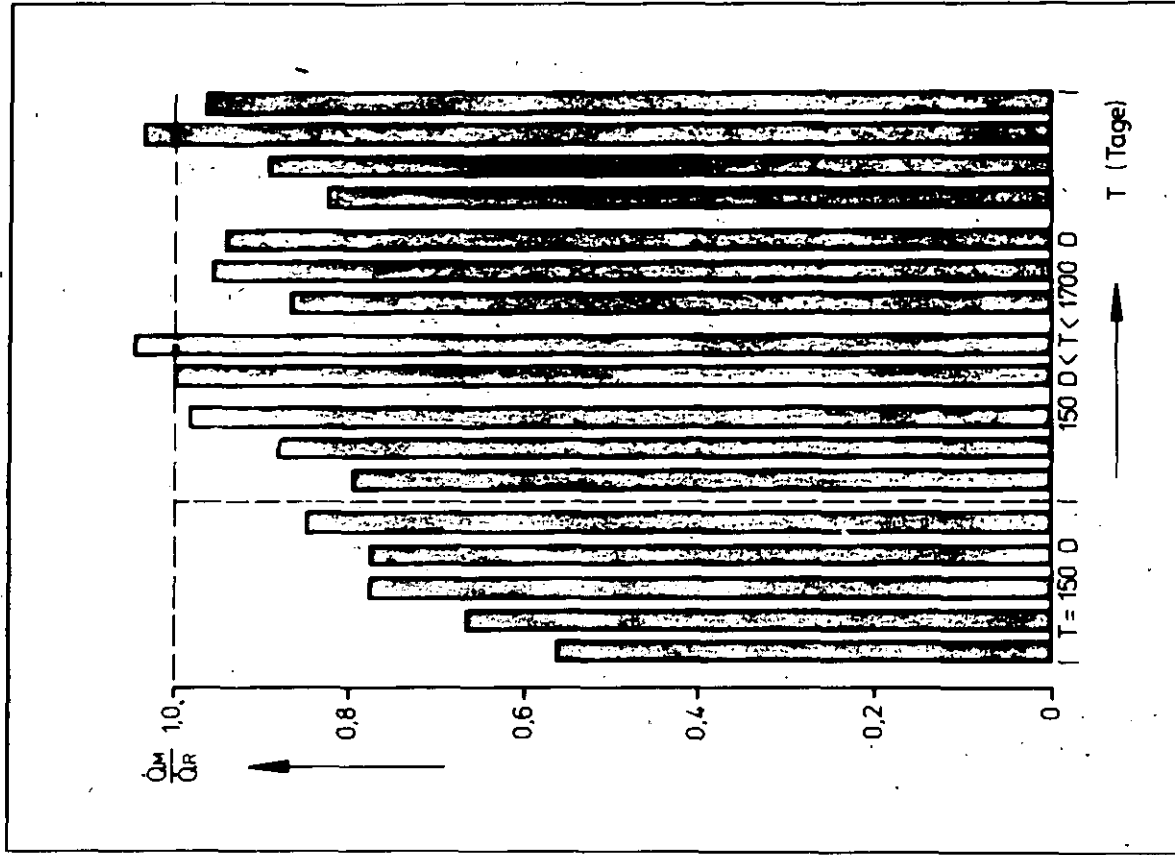


Abb. 7: Vergleich gemessener und berechneter Nachwärmeleistung

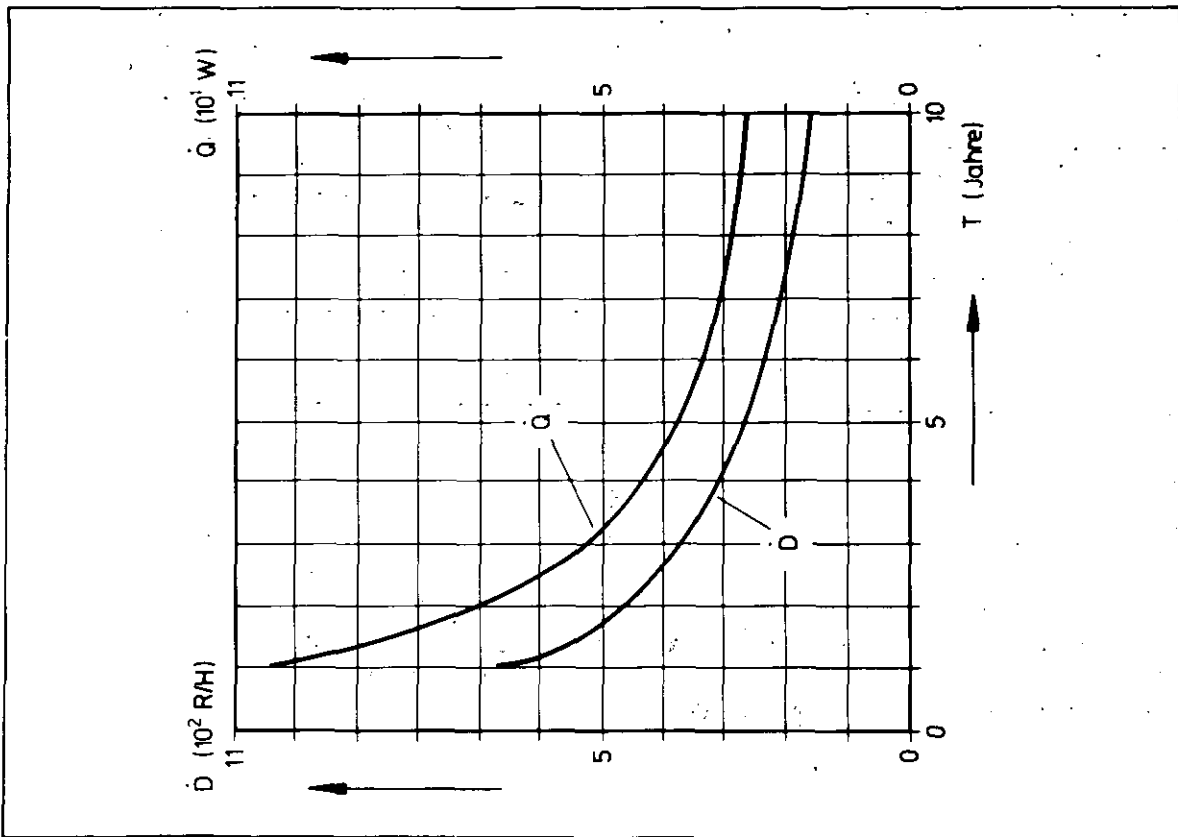


Abb. 8: Nachwärmeproduktion Q und Dosisleistung D ($s = 1 \text{ m}$) eines BE-Trockenlagerbehälters

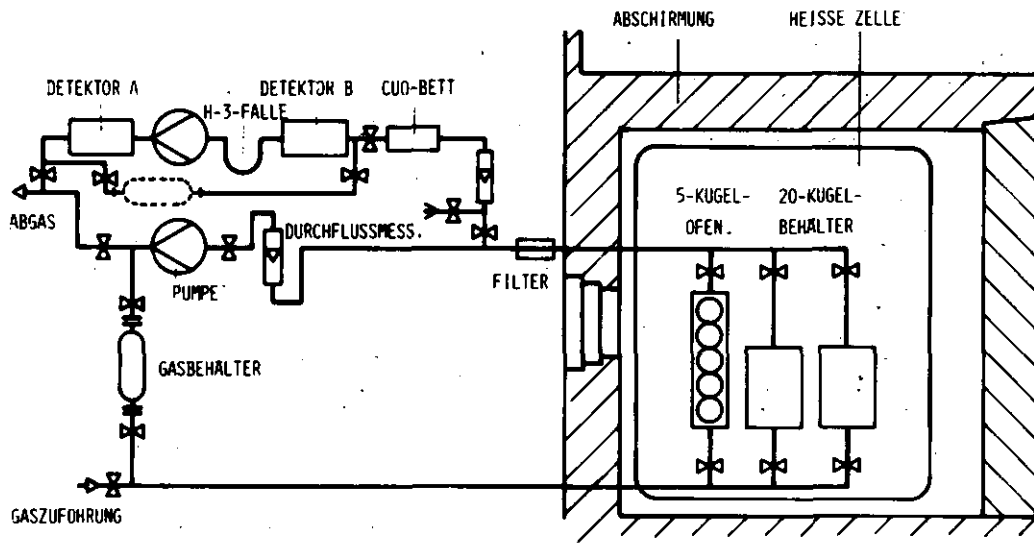


Abb. 9: 5-k-Ofen und 20-k-Behälter mit Gaskreislauf und Tritium-Krypton-Messanlage

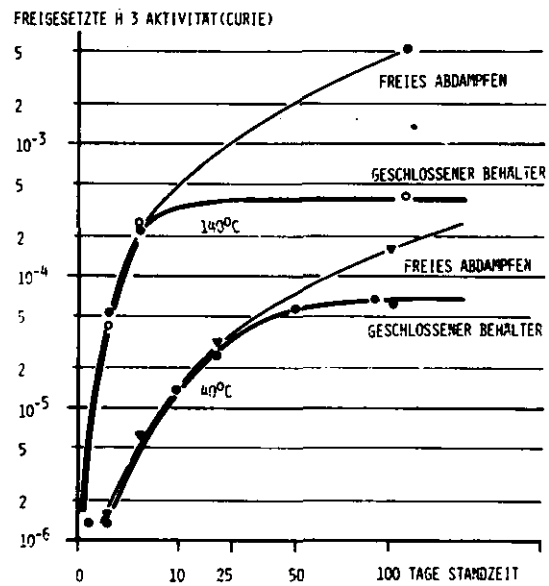
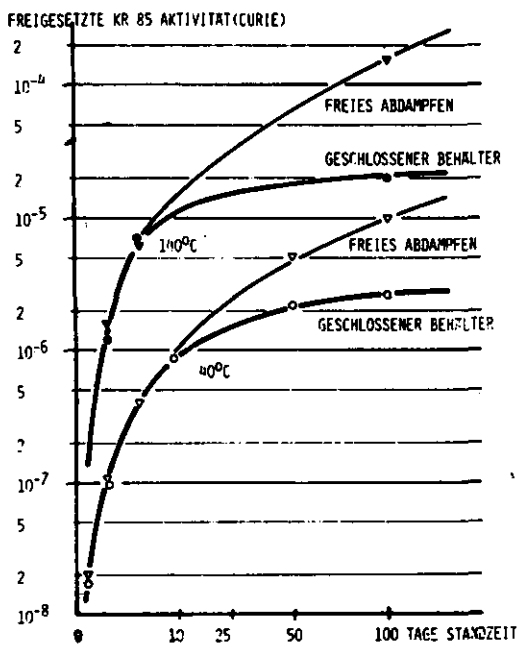


Abb. 10: Freigesetzte H 3- bzw. Kr 85-Aktivität aus 20 lagernden HTR-Brennelementen (G0) bei offenem und geschlossenem Behälter mit 7 Liter Leervolumen

Bestrahlungserprobung der graphitischen Matrix für kugelförmige HTR-Brennelemente

W. Delle, L. Binkéle, G. Kleist, W. Rind⁺, H.A. Schulze, R.-E. Schulze

Institut für Reaktorwerkstoffe
Kernforschungsanlage Jülich GmbH

⁺NUKEM/HOBEG GmbH, Hanau

1. Einleitung und Zielsetzung

Das kugelförmige Brennelement für gasgekühlte Hochtemperatur-Reaktoren (HTR) wurde von der Firma HRB ausgelegt und von der Firma NUKEM/HOBEG entwickelt und gefertigt. Sein Kern von 50 mm Durchmesser besteht aus graphitischer Matrix mit eingepreßten beschichteten Kernbrennstoffteilchen und ist von einer 5 mm dicken brennstofffreien Schale aus der gleichen Matrix umhüllt. Das kugelförmige HTR-Brennelement besteht also aus zwei Komponenten (Bild 1):

- beschichtete Kernbrennstoffteilchen
- graphitische Matrix

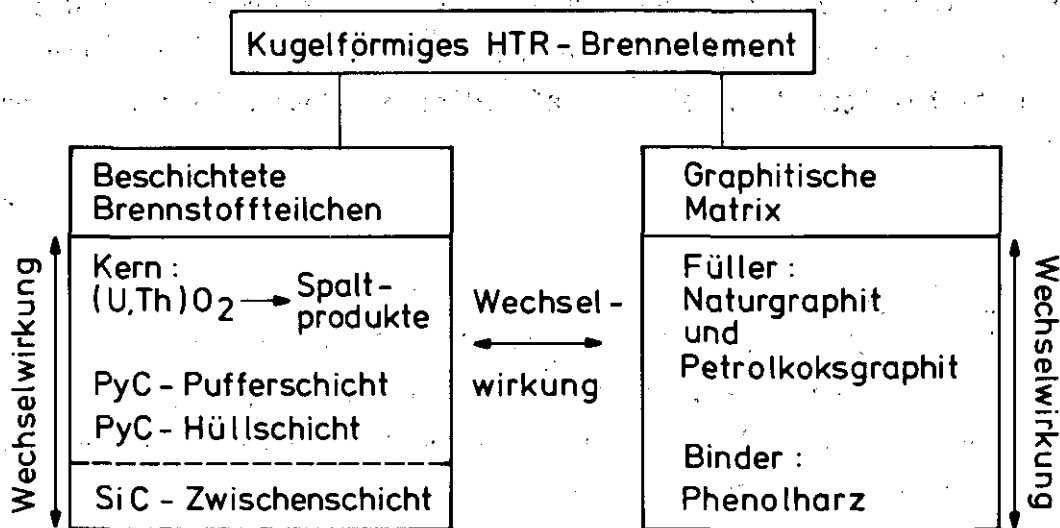


Bild 1: Komponenten des kugelförmigen Brennelementes

Unter Neutronenbestrahlung erfahren diese Komponenten Veränderungen in den Lineardimensionen und physikalischen Eigenschaften, außerdem treten Wechselwirkungen zwischen ihnen auf. Es war daher erforderlich, zunächst die Komponenten einzeln zu optimieren und unter Bestrahlung zu erproben. Das bedeutete Erforschung der Zusammenhänge zwischen den Herstellungsparametern und den physikalischen Eigenschaften sowie den bestrahlungsinduzierten Änderungen. Wie Bild 1 zeigt, bestehen die beiden Komponenten ihrerseits wiederum aus verschiedenen Bestandteilen, die sich unter Bestrahlung gegenseitig beeinflussen können.

Ziel dieses Vortrages ist es, einen Überblick über die Bestrahlungserprobung der graphitischen Matrix zu geben, die für die Brennelemente des vor der Vollendung stehenden THTR (Thorium-Hochtemperatur-Reaktor) verwendet wird. Zu diesem Zweck soll eingangs gezeigt werden, wie breit die Herstellungsparameter variiert wurden, um das Ziel einer Standardqualität zu erreichen. In Tabelle 1 ist dargestellt, welche Variationen von der Firma NUKEM/HOBEG vorgenommen wurden, um eine relative Materialoptimierung zu erreichen. Die Werte für die resultierende Standardmatrix A3-3 sind in der Tabelle umrandet. Sie setzt sich nach der Temperaturendbehandlung aus 72% Naturgraphit, 18% Elektrographit und 10% Binderkoks zusammen. Die Zugabe von Härter, mit der eine noch höhere Festigkeit erzielt werden kann, wurde wegen ungünstiger bestrahlungsbedingter Effekte fallengelassen. Dabei wurden allerdings Möglichkeiten erschlossen, durch die solche unerwünschten Effekte vermindert oder sogar vermieden werden können. Am erfolgreichsten erwies sich die Verwendung von Naturgraphitfüller mit geringer Korngröße, die es ermöglicht, auch bei härterhaltigem Material ein befriedigendes Bestrahlungsverhalten zu erzielen.

(Tab. 1)

2. Experimentelle Durchführung

Für Bestrahlungszwecke wurden brennstofffreie Vollkugeln nach dem gleichen Verfahren wie die Brennelemente hergestellt. Aus diesen erfolgte eine definierte Probenentnahme parallel (\parallel) und senkrecht (\perp) zur Äquatorebene.

Die Proben wurden überwiegend im Rahmen des gemeinsamen DRAGON/ECN/EURATOM/KFA-Programms im HFR Petten isotherm bei Temperaturen zwischen 400 und 1450°C bestrahlt. Kriechexperimente wurden auch im DRAGON-Reaktor ausgeführt. Die Vor-, Zwischen- und Nachuntersuchungen der Proben erstreckten sich auf die Lineardimensionen, die thermischen und die elektrischen Eigenschaften sowie auf den dynamischen Elastizitätsmodul.

| Parameter | Variationen |
|--|--|
| Verhältnis von Naturgraphit zu Petrolkokso-graphit | 4 : 1 6 : 1 |
| Graphitierungsgrad * des Petrolkokso-graphits | $g = 0,2$ $g = 0,9$ |
| Mittlere Korngröße des Naturgraphits | $7 \mu\text{m}$ $40 \mu\text{m}$ |
| Bindergehalt | 20 23 26 Gew. % |
| Härterzugabe | 0 5 10 20 ** Gew. % |
| Wärmeendbehandlung der Bestrahlungsproben | 1600°C 1800°C |

Binder: Phenolharz

Härter: Hexamethylentetramin

Preßverfahren: quasiisostatisch

 : Standardmatrix A3 - 3

* $g = 1,0$ entspricht höchster Kristallinität

** bezogen auf den Bindergehalt

Tab. 1: Parametervariationen zur Optimierung der Standardmatrix A3-3
(durchgeführt bei der Firma NUKEM/HOBEG)

Festigkeitsuntersuchungen wurden im Rahmen anderer Programme an integralen Brennelementen durchgeführt.

3. Ergebnisse

Bild 2 und Bild 3 zeigen das **Dimensionsverhalten** der Standardmatrix A3-3 im mittleren Temperaturbereich (Mittelwerte von Bestrahlungstemperatur und Fluß schneller Neutronen: 400 bis 850°C und $0,3 \text{ bis } 0,8 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ EDN}$) und im Hochtemperaturbereich (850 bis 1450°C und $0,8 \text{ bis } 2,5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ EDN}$). In der zugehörigen Tabelle sind jeweils Isothermen zusammengefaßt, die ähnliche mittlere Temperaturen und Neutronenflüsse aufweisen. Eine Ausnahme bildet die Isothermengruppe J bis T, bei der größere Unterschiede in den Flußwerten auftreten.

Generell ergibt sich aus diesen Testserien, daß die Standardmatrix - auch bei sehr hohen Bestrahlungsbelastungen - noch eine gute Dimensionsstabilität aufweist und sich isotrop verhält. Bei der THTR-Zielfluenz von $3,5 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2} \text{ EDN}$ treten im Bereich mittlerer Temperaturen die stärksten Schrumpfungen ($\sim 2\%$) bei Temperaturen zwischen 400 und 650°C auf (Bild 2). Im Bereich hoher Temperaturen werden bei dieser Fluenz entsprechende Schrumpfwerte erst oberhalb 1250°C erreicht (Bild 3). Die Tests wurden zum Teil über die THTR-Zielfluenz hinaus fortgeführt, um eine Erweiterung und Vertiefung der Kenntnisse über das Bestrahlungsverhalten zu erzielen. Die Vielfalt der ermittelten Isothermen unterschiedlicher Kombinationen von Bestrahlungstemperatur und Fluß schneller Neutronen ermöglichte es einerseits, den Einfluß der Bestrahlungsparameter auf das Materialverhalten zu ermitteln^{1,2}), andererseits - durch Isothermenvergleich mit A3-Varianten - den Einfluß von Material- und Herstellungsparametern festzustellen³).

Der **Koeffizient der linearen thermischen Ausdehnung** (α) wurde durch die Neutronenbestrahlung erhöht. Dabei ist auch die bekannte Tendenz, daß diese Erhöhung bei höheren Bestrahlungstemperaturen kleiner ist als bei niedrigeren, klar erkennbar. In Bild 4 sind die relativen Änderungen von α für den mittleren und höheren Temperaturbereich jeweils als Bereiche dargestellt, innerhalb deren Begrenzungslinien alle Meßwerte liegen. Diese Bereiche überlappen sich zwar, weisen aber typische Unterschiede auf. Bei Temperaturen zwischen 400 und 850°C und mittleren Neutronenflußwerten von $0,2 \text{ bis } 0,9 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ EDN}$ ergeben sich maximale Änderungen bis 55%, die den niedrigen Temperaturen dieses Bereiches zuzuordnen sind, während den höheren Temperaturen geringere Zunahmen entsprechen. Im Hochtemperaturbereich bei mittleren Temperaturen zwischen 800 und 1450°C und mittleren Flußwerten von

$1,1$ bis $2,6 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ EDN}$ liegen die maximalen Änderungen von α bei Werten um 25%. Hierbei ist eine Temperaturzuordnung im einzelnen nicht möglich. Die **Wärmeleitfähigkeit** der unbestrahlten Standardmatrix beträgt bei 20°C etwa $0,5$, bei 500°C etwa $0,35$ und bei 1000°C etwa $0,3 \text{ W/cm} \cdot \text{K}$. Unter Bestrahlung (Bild 5) nimmt sie mit der Fluenz monoton ab; lediglich bei Temperaturen oberhalb 1300°C wird hier ein leichter Anstieg beobachtet, der auf die bestrahlungsinduzierte Nachordnung der Binderphase zurückgeführt werden kann. Die Meßwerte lassen sich modellmäßig beschreiben, wie in Bild 5 gezeigt wird ⁴⁾.

Das bestrahlungsinduzierte **Kriechverhalten** der Standardmatrix A3-3 wurde einerseits mittels Aufschumpfkriechexperimenten ⁵⁾ (im HFR-Petten) mit zeitlich variabler mechanischer Belastung und andererseits bei konstanter Belastung von Zugproben (im DRAGON-Reaktor) ermittelt. Temperaturschwankungen im DRAGON-Reaktor, bedingt durch geänderte Corebelastung von Zyklus zu Zyklus und durch Abbrand innerhalb eines Zyklus, führten zu der in Bild 6 durch Fehlerbalken markierten Temperaturunbestimmtheit. Die Bestrahlungstemperatur der Aufschumpfkriechexperimente im HFR-Petten ist bis auf etwa $\pm 30^\circ\text{C}$ definiert. Bild 6 zeigt den Anstieg des Koeffizienten des stationären bestrahlungsinduzierten Kriechens K mit der Bestrahlungstemperatur. Die Unsicherheit eines Einzelergebnisses von K wird auf $\pm 25\%$ abgeschätzt. Statistische Meßwertschwankungen der Dragon-Ergebnisse wurden anders als bei den Pettenenergebnissen durch ein Ausgleichsverfahren bei der Auswertung unterdrückt. Die Ergebnisse bei Bestrahlungstemperaturen oberhalb 1100°C deuten einen Einfluß der Höhe des Neutronenflusses auf den Kriechkoeffizienten an. Danach ergibt sich für niedrigere Neutronenflüsse ein höherer Kriechkoeffizient ⁶⁾. Die Werte für Kriechkoeffizienten der Standardmatrix A3-3 liegen innerhalb der Grenzen des sog. Pettenbandes für zahlreiche Reaktorgraphite. Die Änderung des **Elastizitätsmoduls** (E) durch die Bestrahlung mit schnellen Neutronen ist in Bild 7 dargestellt. Man erkennt, daß bei geringen Fluenzen ein Anstieg erfolgte, der um so steiler ist, je niedriger die Bestrahlungstemperatur war. Dieser anfängliche Anstieg kann dem sog. "pinning effect" zugeschrieben werden ⁷⁾. Hiernach bewirken bestrahlungsinduzierte Punktdefekt-Cluster ein "pinning" der beweglichen Versetzungen in den gut geordneten Bereichen der Matrix und verursachen dadurch eine Erhöhung des E-Moduls. Der geringe Anstieg bei höheren Bestrahlungstemperaturen ist eine Folge der größeren Rekombinationswahrscheinlichkeit der Punktdefekte. Die relative Abnahme des E-Moduls mit zunehmender Fluenz wird auf die bestrahlungsinduzierte Nachordnung der schlecht geordneten Binderphase zurückgeführt ⁸⁾. Dieser Effekt ist bei höheren Bestrahlungstemperaturen größer als bei niedri-

gen, und kann zusätzlich durch Porositätsänderungen beeinflusst werden. Der E-Modul von Graphit kann mit seiner Festigkeit über die Beziehung

$$\frac{\sigma^*}{\sigma_0} = K \sqrt{\frac{E^*}{E_0}}$$

korreliert werden. In dieser Beziehung bedeuten σ_0 und E_0 die Festigkeit und den E-Modul vor der Bestrahlung und σ^* und E^* die Festigkeit und den E-Modul nach der Bestrahlung sowie K eine werkstoffabhängige Konstante mit Werten um 1.

Messungen der Zerdrückfestigkeit an integralen Brennelementen nach der Bestrahlung haben gezeigt, daß auch dort durch die Bestrahlung eine Verfestigung bewirkt wird (Bild 8)⁹⁾. Erst bei Fluenzen, die über den Lebensdauerwerten liegen, nimmt die Festigkeit wieder ab¹⁰⁾.

4. Zusammenfassung

Die Erprobung der Standardmatrix A3-3 der Firma NUKEM/HOBEG hat gezeigt, daß sich die Dimensionen und Eigenschaften unter Bestrahlung in einem zulässigen Rahmen ändern. Die Festigkeit wird durch die Neutronenexposition sogar noch erhöht. Die Bestrahlungsergebnisse der siebenjährigen Testserien werden gemeinsam mit Parameterkorrelationen in einer Studie zusammengestellt, die kurz vor ihrem Abschluß steht.

5. Literatur

- 1) W. Delle, G. Haag, H. Nickel, H.A. Schulze, R.-E. Schulze: 4th Intern. Conf. on Industr. Carbon and Graphite, London, proceed. 741 (1974)
- 2) H.A. Schulze, R.-E. Schulze, W. Delle, A. Naoumidis: Reaktortagung 1978, Hannover, Tagungsbericht 679 (1978).
- 3) R.-E. Schulze, H.A. Schulze, W. Delle: 5th Intern. Conf. on Industr. Carbon and Graphite, London, proceed. 904 (1978)
- 4) L. Binkle: High Temp.-High Press, 4, 401 (1972)
- 5) H.J. Veringa, R. Blackstone: Carbon 14, 279 (1976)
- 6) G. Jouquet, G. Kleist, H. Veringa: J. Nucl. Mater. 65, 86 (1977)
- 7) B.T. Kelly: Phil. Mag., 9, 721 (1964)
- 8) W. Delle, H.A. Schulze, R.-E. Schulze: 2nd Intern. Conf. on Structural Mechanics in Reactor Technology, Berlin, (1973)
- 9) W. Burck: Jahresbericht der KFA 1977/78, 25
- 10) A. Kleine-Tebbe, H. Ragoß: Int. Kohlenstofftagung CARBON '72, Baden-Baden, 197 (1972)

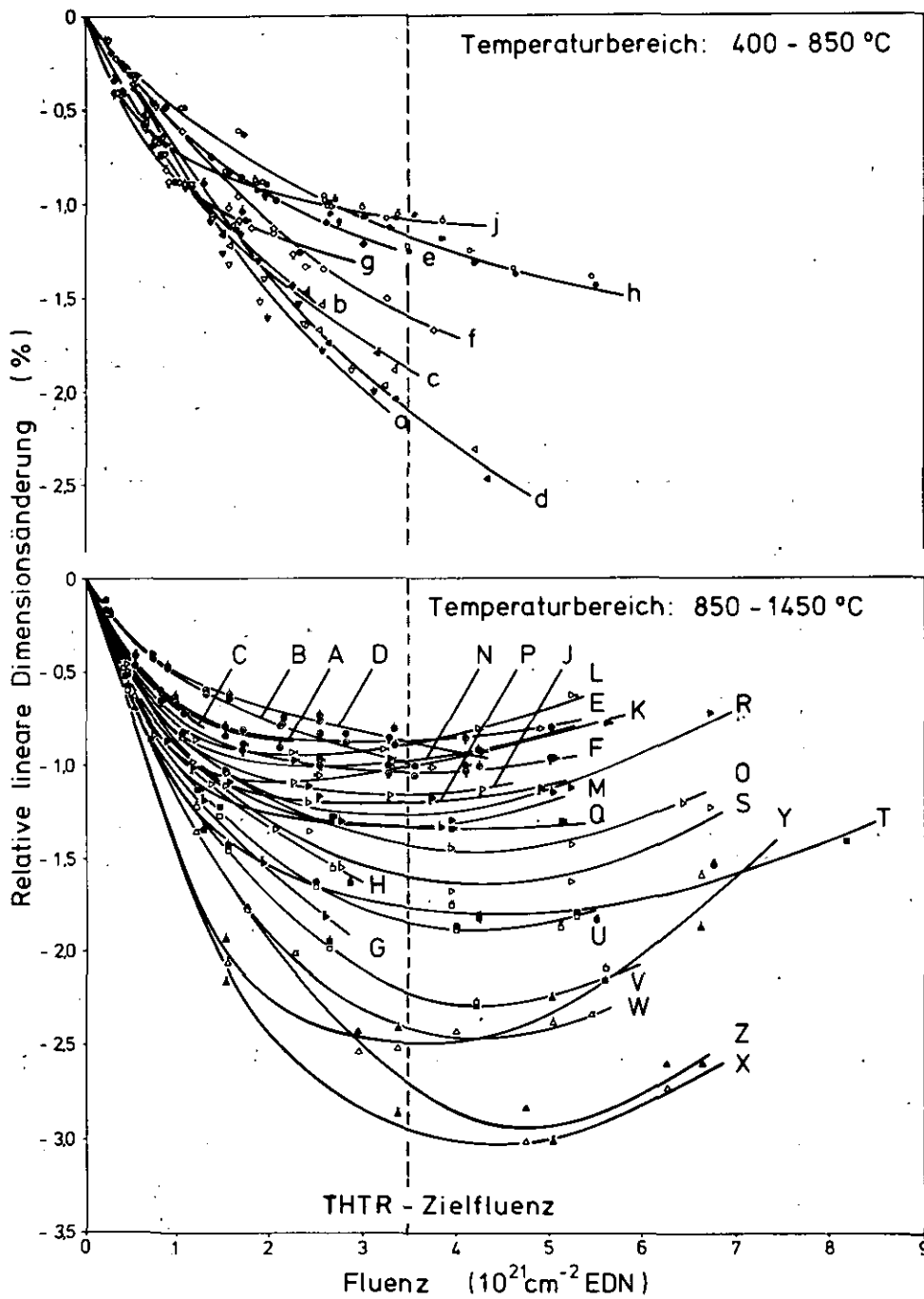


Bild 2 Relative Änderungen der Lineardimensionen der Standardmatrix A3-3 und 3: durch Bestrahlung mit schnellen Neutronen

| Iso- therme | Mittlere Temperatur (°C) | Mittlerer Fluß ($10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) | | | |
|----------------|--------------------------------|---|---------|-------------|-----------|
| a und b | 425 - 455 | 0,3 - 0,5 | B | 875 | 1,1 |
| c und d | 580 - 640 | 0,7 - 0,8 | C | 895 | 1,5 |
| e bis g | 750 - 775 | 0,3 - 0,5 | D bis F | 920 - 935 | 1,3 |
| h, j, A | 840 - 870 | 0,7 - 0,8 | G und H | 1080 | 1,0 - 1,1 |
| | | | J bis T | 1110 - 1185 | 1,6 - 2,0 |
| | | | U | 1240 | 2,1 |
| | | | V | 1270 | 2,2 |
| | | | W | 1330 | 2,3 |
| | | | X bis Z | 1385 - 1430 | 2,5 |

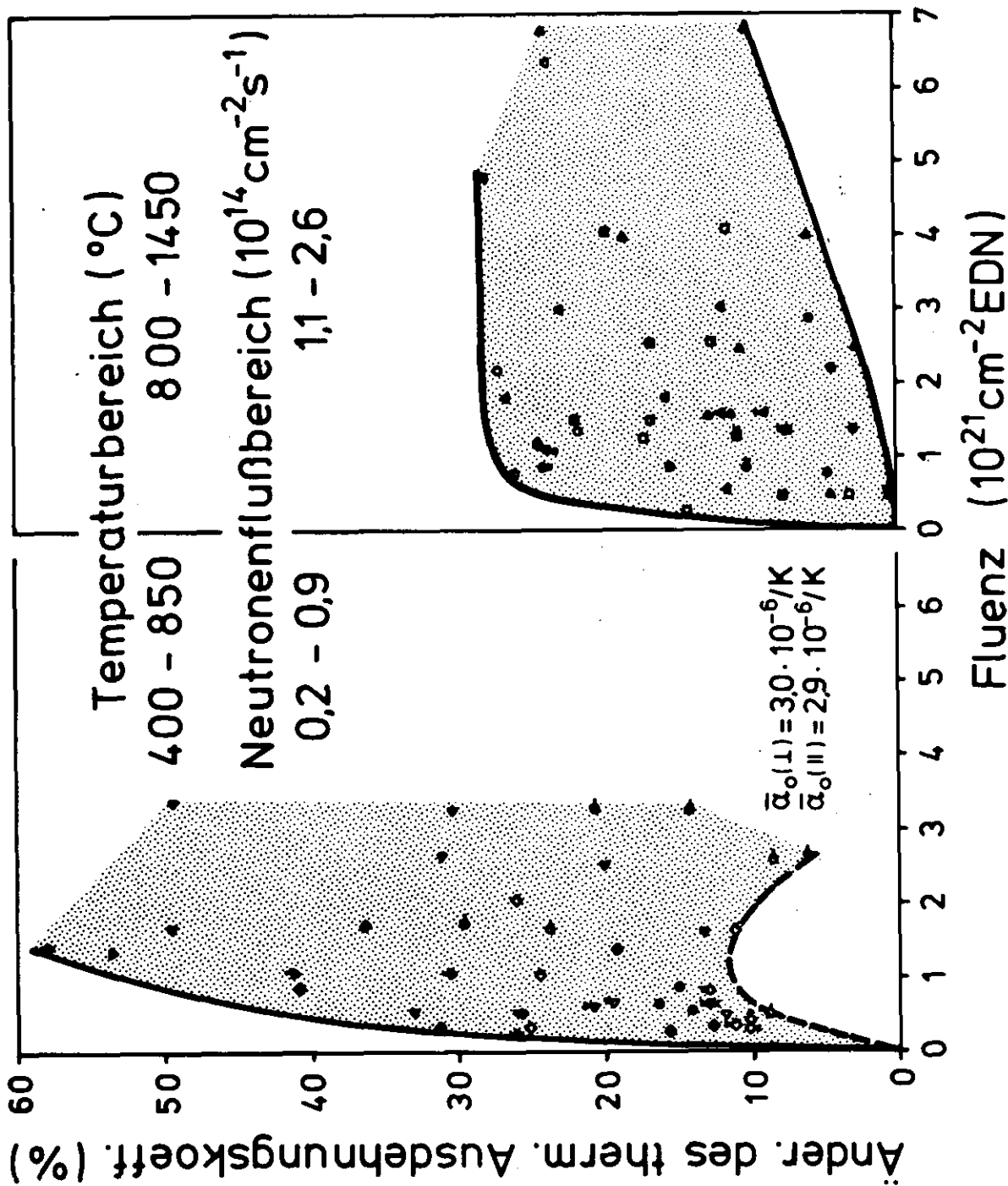


Bild 4:
Änderung des thermischen
Ausdehnungskoeffizienten
der Standardmatrix A3-3 in
Abhängigkeit von der Fluenz
(ermittelt zwischen 20 und
500°C)

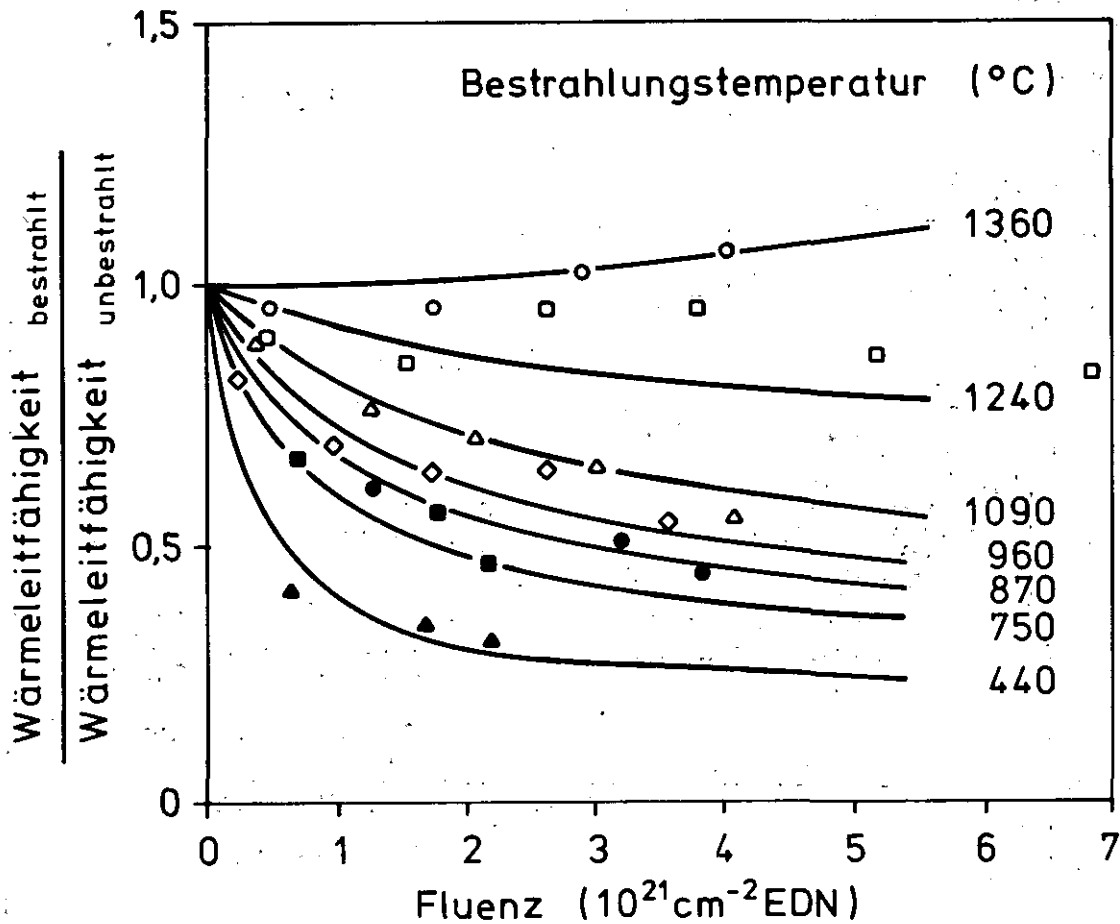


Bild 5: Verhältnis der Wärmeleitfähigkeiten der Standardmatrix A3-3 vor und nach der Bestrahlung in Abhängigkeit von der Fluenz (gemessen bei den Bestrahlungstemperaturen). Die eingezeichneten Symbole stellen Meßpunkte dar, die eingezeichneten Kurvenzüge sind modellmäßige Approximationen:

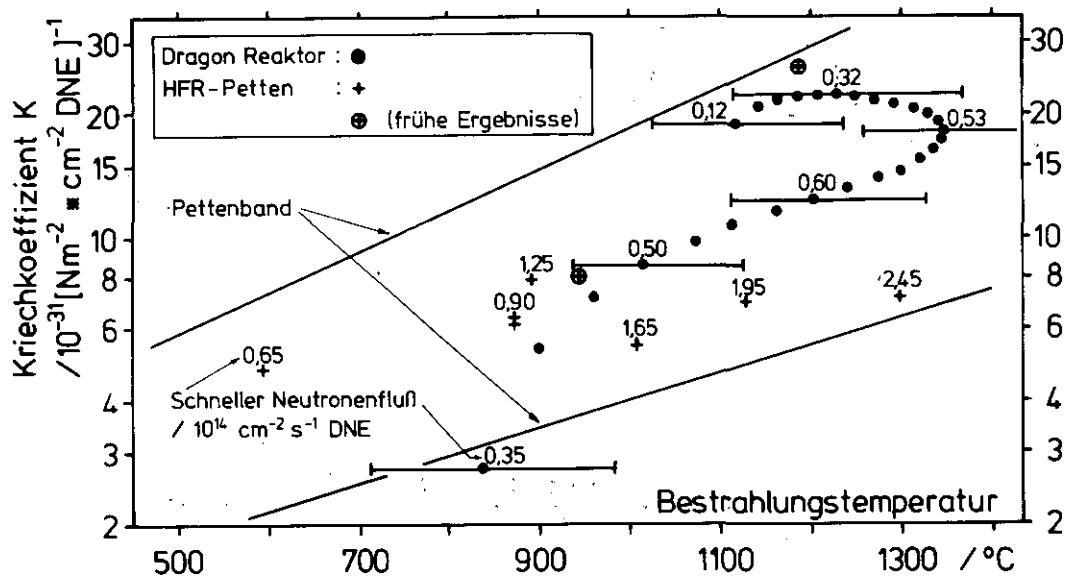


Bild 6: Bestrahlungskriechkoeffizient für die Standardmatrix A3-3

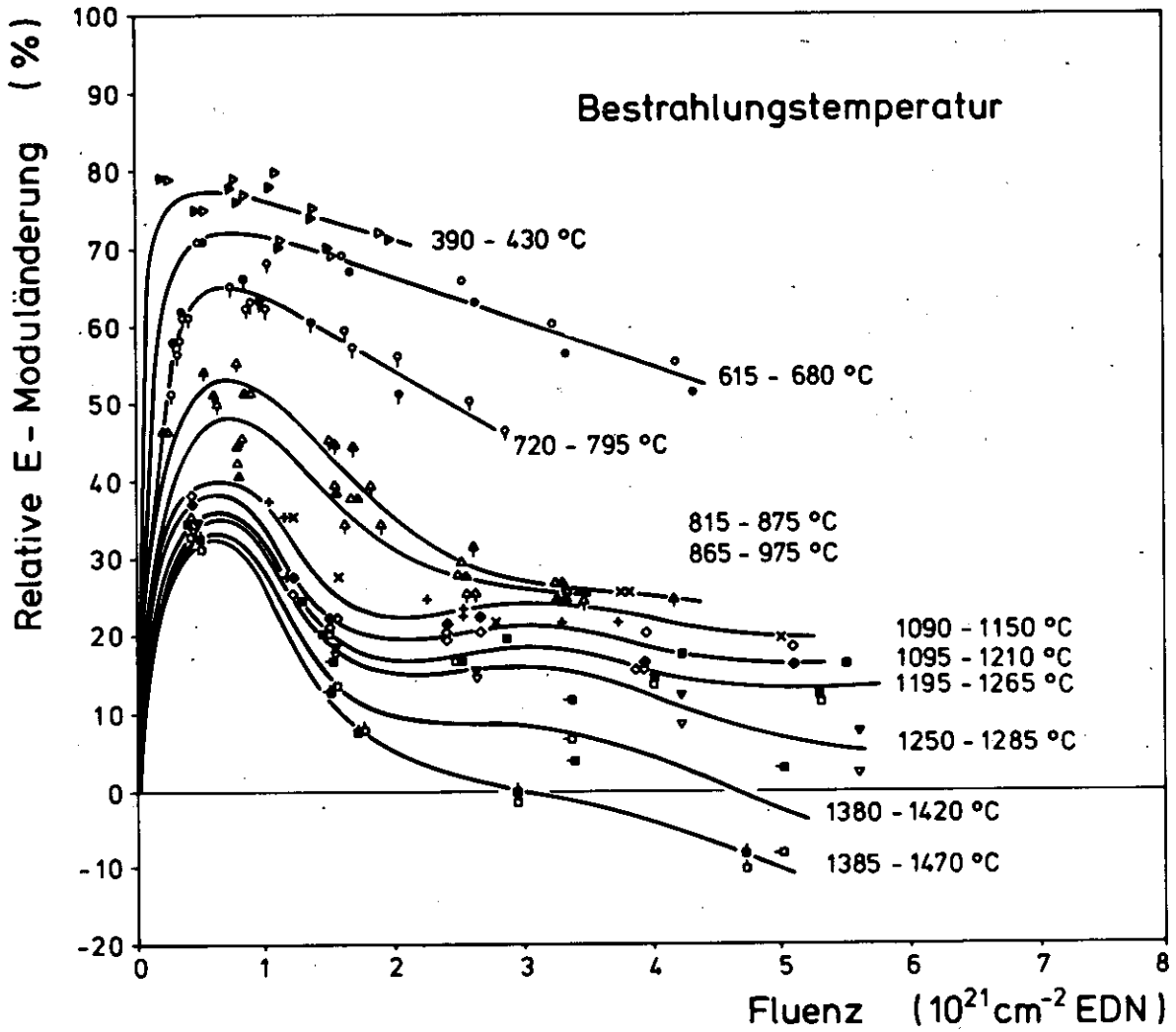


Bild 7: Änderung des dynamischen Elastizitätsmoduls der Standardmatrix A3-3 in Abhängigkeit von der Fluenz bei unterschiedlichen Bestrahlungstemperaturen

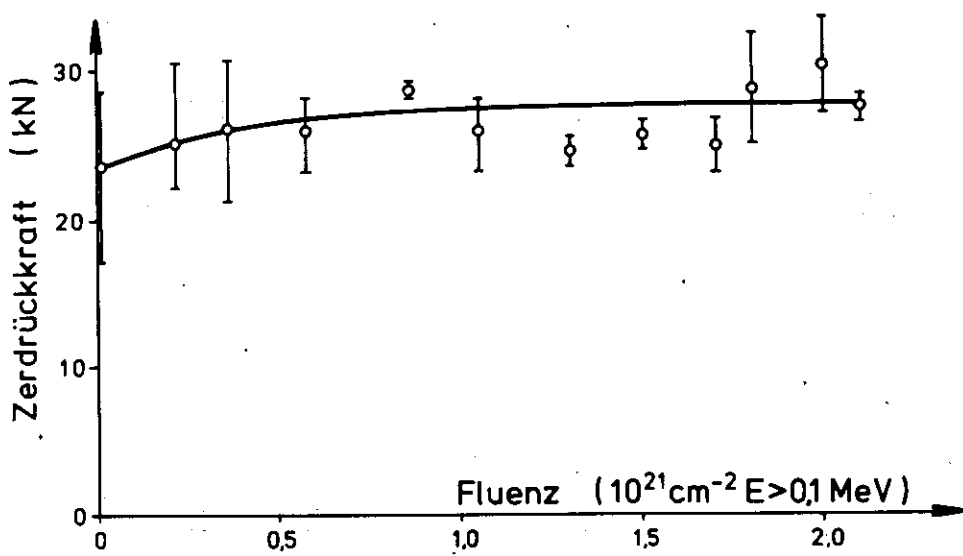


Bild 8: Zerdrückkraft von AVR-Brennelementen nach Bestrahlung (nach ⁹⁾)

FORTSCHRITTE BEI DER BESTRAHLUNGSERPROBUNG VON GRAPHIT FÜR HOCHTEMPERATUR-REAKTOREN

G. Haag¹⁾, M.F. O'Connor²⁾, C.R. Kennedy³⁾, R.J. Price⁴⁾

- 1) Kernforschungsanlage Jülich GmbH
- 2) Sigri Elektrographit GmbH, Meitingen
- 3) Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge/Tenn. USA
- 4) General Atomic Company, San Diego/Cal. USA

In Hochtemperaturreaktoren nach dem OTTO-Prinzip erreichen der Deckenreflektor und der obere Teil des Seitenreflektors eine Neutronenfluenz von über $3 \times 10^{22} \text{ cm}^{-2}$ (EDN) im Temperaturbereich zwischen 300° C und 750° C , während beim Bodenreflektor und unteren Seitenreflektor bei Temperaturen zwischen 750° C und 1000° C die Neutronenfluenz bis zu $1,5 \times 10^{22} \text{ cm}^{-2}$ (EDN) betragen kann. Zur Herstellung dieser Core-Komponenten wird isotoper Graphit benötigt, der solchen Belastungen gewachsen ist.

Seit 1977 wurden zahlreiche Graphitsorten für diese Zwecke hergestellt, von denen aufgrund ihrer Materialdaten sechs Sorten in die engere Wahl kamen. In mehreren Bestrahlungsexperimenten im Hochflußreaktor (HFR) Petten (Niederlande) wird seit 1978 das Bestrahlungsverhalten dieser Graphite untersucht, doch sind solche Bestrahlungsexperimente so aufwendig, daß die Anzahl der betrachteten Graphitsorten anhand der ersten Bestrahlungsergebnisse weiter reduziert werden soll.

Zu diesem Zweck wurden auch im High Flux Isotope Reactor (HFIR) Oak Ridge (USA) einige Bestrahlungsexperimente bei sehr hohen Neutronenflußdichten ($\phi_{\text{HFIR}} / \phi_{\text{HFR}} \approx 4$) durchgeführt, wobei schon nach entsprechend kürzerer Bestrahlungszeit Meßergebnisse jenseits des Umkehrpunktes der linearen Dimensionsänderungen erreicht wurden. Sie zeigen deutliche Unterschiede im Bestrahlungsverhalten der verschiedenen Graphitsorten.

Von grundsätzlichem Interesse für die Beurteilung von Bestrahlungsergebnissen ist ein Vergleich zwischen den in Petten und in Oak Ridge erhaltenen Daten. Die bis Ende 1979 bei ca. 600° C vorliegenden Bestrahlungsdaten zeigen trotz des großen Unterschiedes in der Neutronenflußdichte eine gute Übereinstimmung. In Abb. 1 werden als Beispiel die relativen linearen Dimensionsänderungen für die Graphitsorte ATR-2E miteinander verglichen.

Beim zweiten Verfahren wird die 1000° -Isotherme horizontal verschoben ("Equal-Property-Method"), wie es Abb. 2c zeigt. Dieses Verfahren sollte bei solchen Eigenschaften gerechtfertigt sein, die mit dem jeweiligen Bestrahlungszustand korreliert sind, wie z.B. die Dimensionsänderungen oberhalb 500° C. Es ist jedoch in vielen Fällen mathematisch undurchführbar, z.B. wenn der Temperatursprung in Abb. 2a erst im Minimum der für 600° gültigen Isothermen erfolgt.

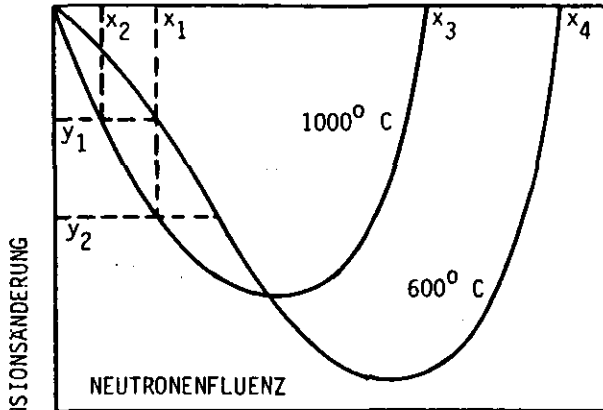


Abb. 2a: Isotherme Kurven

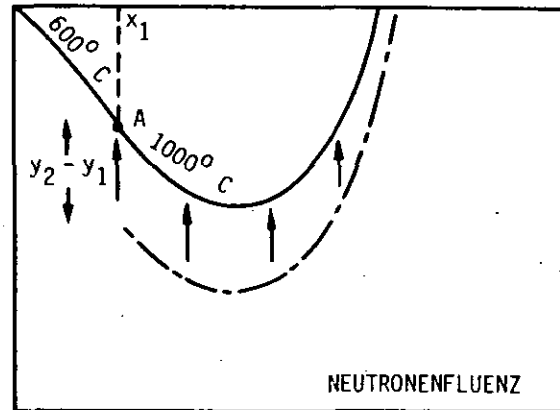


Abb. 2b: Prinzip der "Equal-Fluence"-Methode

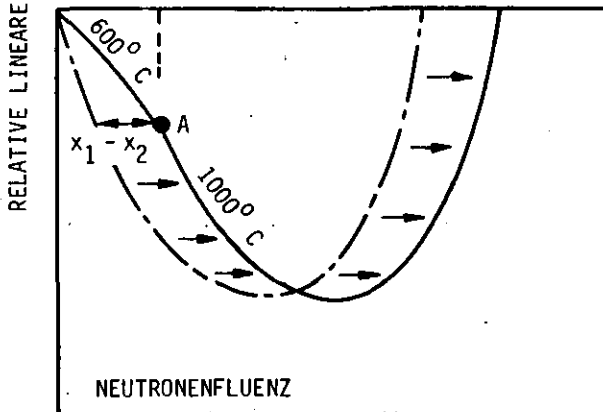


Abb. 2c: Prinzip der "Equal-Property"-Methode

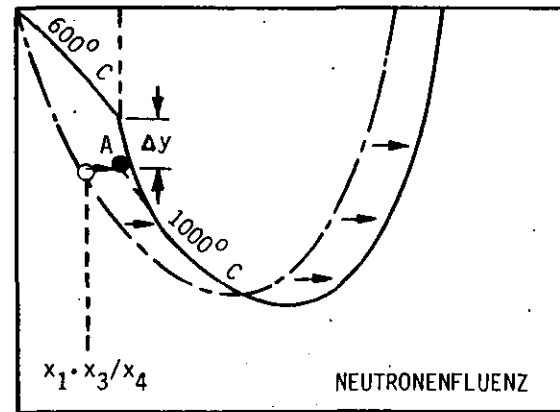


Abb. 2d: Prinzip der "Horizontalverschiebung bei skaliert. Fluenz"

Der weitaus größte Anwendungsbereich wird von einer neuen Methode abgedeckt, die man als "Horizontalverschiebung bei skaliert. Fluenz" bezeichnen kann. Sie ist in Abb. 2d schematisch dargestellt. Die sog. skalierte Fluenz erhält man, wenn man die bei irgendeiner Temperatur T erreichte Fluenz durch die sog. Lebensdauerfluenz - d.i. die Fluenz beim Nulldurchgang der Dimensionsänderung, z.B. x_3 und x_4 in Abb. 2a - dividiert. Die 1000° -Isotherme wird so weit horizontal verschoben, bis der Punkt A, der auf der Isothermen für 1000° der Dosis $x_1 \cdot x_3 / x_4$ entspricht, die Fluenz x_1 erreicht; denn an dieser Stelle stimmen die skalierten Fluenzen von 600° und 1000° überein. Im allgemeinen entsteht bei Anwendung dieses Verfahrens eine Unstetigkeit

von der Größe Δy (Abb. 2d), die z.B. im Fall der Wärmeleitfähigkeit im Prinzip physikalisch sinnvoll ist. In der Praxis wird diese Unstetigkeit so geglättet, daß die Differenz zwischen der vorausgesagten Eigenschaft y und dem entsprechenden Wert y^* auf der verschobenen Isothermen mit zunehmender Fluenz γ exponentiell kleiner wird: $y - y^* = y \cdot \exp(-\gamma/\tau)$. Dabei wird γ von der Stelle des Temperatursprungs aus gezählt; τ ist eine Konstante, die gleich $1 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ (EFFGD) gesetzt wird (EFFGD = $1.87 \times \text{EDN}$).

Experimentell wurde das Bestrahlungsverhalten von Graphit beim Wechsel der Bestrahlungstemperatur in mehreren Bestrahlungsexperimenten untersucht. Dabei wurden die linearen Dimensionsänderungen, der dynamische E-Modul, die Wärmeleitfähigkeit und der thermische Ausdehnungskoeffizient betrachtet. Daß das vorgeschlagene Verfahren zu recht befriedigenden Ergebnissen führt, zeigen die Abb. 3 und Abb. 4. (Lit. [1])

Die Arbeiten wurden im Rahmen des Projekts "HTR-Brennstoffkreislauf" durchgeführt, an dem die Partner GHT, HOEG, HRB, KFA, NUKEM und SIGRI/RW beteiligt sind und das vom BMFT und vom Land NRW gefördert wird.

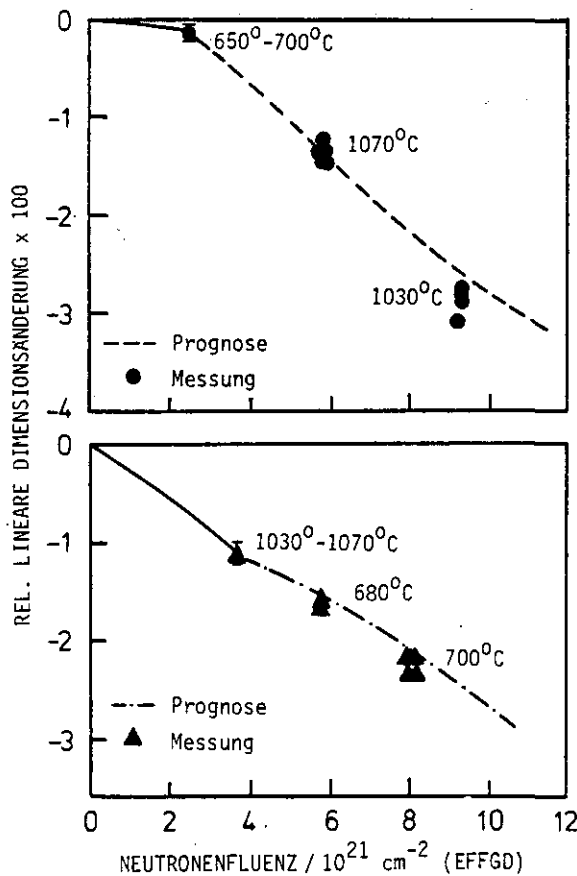


Abb. 3: Temperaturwechselverhalten der Graphitsorte H-451 (axial): Lineardimensionen

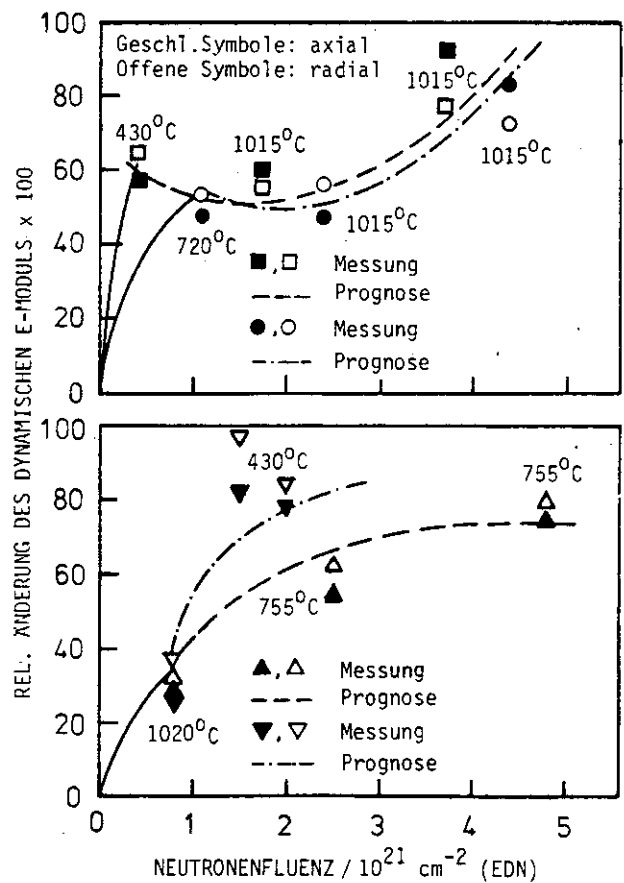


Abb. 4: Temperaturwechselverhalten der Graphitsorte AS2-M-500: Dynamischer E-Modul